

Beschusswinkelabhängige kinetisch induzierte elektronische Anregung in Dünnschichtsystemen

vorgelegt der
Fakultät für Physik
der
Universität Duisburg-Essen



Zur Erlangung des akademischen Grades eines
Doktor der Naturwissenschaften
(Dr. rer. nat.)
genehmigte

Dissertation

von
Christian Heuser

Duisburg, den 24.06.2012

Datum der Disputation: 12. Oktober 2012

Gutachter:

Prof. Dr. Andreas Wucher

Prof. Dr. Friedrich Aumayr

Inhaltsverzeichnis

Abstract.....	1
Kurzfassung.....	2
1 Einleitung.....	3
2 Grundlagen der Elektronenemission	7
2.1 Nuclear Stopping & Electronic Stopping.....	7
2.2 Elektronischer Transport.....	9
2.3 Modelle der externen Elektronenemission.....	11
3 Metall-Isolator-Metall Modellierung	19
3.1 Allgemeines.....	19
3.2 Modelltheorie	20
3.3 Modellergebnisse	26
3.4 Einfluss des chemischen Potentials.....	30
3.5 Modell-Vorhersagen in Bezug auf das Experiment	32
3.6 BEEM-Transmission.....	36
3.7 Fazit.....	43
4 Versuchsaufbau	45
4.1 Allgemeines.....	45
4.2 Vakuumsystem	46
4.3 Atomika Ionenquelle.....	47
4.4 Elektronenstrahl Verdampfer	49
4.5 Probenhalter	51
5 Experimentelle Durchführung (externe Emission).....	55
5.1 Redesign des Probenhalters.....	55
5.2 Probenpräparation: Silberfilme	57
5.3 Probenpräparation: Silber-Einkristalle.....	58
5.4 Messmethodik	63
6 Ergebnisse der externen Elektronenemission	67
6.1 Messergebnisse	67
6.2 Energieabhängigkeit der Elektronenemission.....	68
6.3 Vergleich der Ausbeuten für verschiedene Kristallstrukturen	73
6.4 Beschusswinkelabhängigkeit der externen Elektronenemission.....	79
6.5 Fazit.....	85
7 Experimentelle Durchführung (innere Emission).....	87
7.1 Messaufbau	87

7.2	Verwendete Messtechnik	89
7.3	Auswertung der Messsignale	93
7.4	Schichtdickenabtrag	97
8	Ergebnisse zur inneren Elektronenemission	99
8.1	Energieabhängigkeit.....	99
8.2	Winkelabhängigkeit im Experiment	104
8.3	Winkelabhängigkeit in SRIM	111
8.4	Ballistischer Transport der Elektronen.....	115
8.5	Forward Electron Emission.....	136
8.6	Fazit.....	140
9	Zusammenfassung & Ausblick.....	143
A	Anhang.....	145
A.1	Die Physik hinter den MIM-Systemen.....	145
A.2	Funktionsweise von SRIM/TRIM.....	153
A.3	Winkelverteilung der Projektile	160
	Quellcode (Berechnung der Inneren Emission)	164
	Quellcode (Berechnung der Anregungsverteilung)	168
	Literaturverzeichnis	171
	Danksagung.....	183

Abstract

The following work deals with the impact-angle dependent ion-induced electronic excitation of MIM (metal-insulator-metal) systems and single crystals. Thereby the impact angle dependence of the internal as well as the external electron emissions yield is studied and a ballistic model is developed to describe the observed behavior.

The energy-, the impact angle- and the crystal-structure dependence of the external electron yield is studied for 5-keV to 10-keV $\text{Ar}^+ \rightarrow \text{Ag}$, and it is shown, that the results can be understood in terms of existing models of Baragiola and Sroubek. Moreover it is demonstrated, that it is possible to derive the local electron temperature in the impact region by applying Sroubek's Hot-Spot Model. Using this temperature and some model assumptions concerning the spatial expansion and temporal duration of the emission, it is possible to calculate the external yield within a modified version of the Richardson-Dushman Model.

In the case of the internal emission in MIM systems it is demonstrated, that the internal electron emission yield exhibits a clear impact angle dependence, as it drops by an order of magnitude, if the impact angle is changed from perpendicular to grazing incidence. Furthermore, the impact-angle dependent shape of the internal yield remains the same, if either the primary energy or the thickness of the top metal layer are changed. Another striking result is the unchanged bias-dependent polarity change of the internal emission yield for different impact angles of the projectiles. This observation can be interpreted in terms of the Two-Temperature Model developed by Meyer. Within this model, the bias-dependent polarity change of the internal yield is directly connected to the electron temperature at the metal-oxide interface. For high values of the electron temperature a linear dependence between electron temperature and bias voltage is observed, where the slope is correlated to the band structure at the interface. Moreover it is shown, that the temperature dependence of the chemical potential as well as the ion-induced heating of the sample can be neglected.

Finally an anisotropic model is developed, which bases on the ballistic model by Baragiola. It is shown, that the decrease of the normalized internal yield can be understood fairly well, if the assumption is made, that hot electrons, which are excited by the projectile at the surface, dominate the internal yield. These excited electrons exhibit an angular distribution and travel anisotropically within a transport cone downwards to the buried oxide barrier. The simplified treatment of phenomena like scattering, transmission and other excitation mechanisms are discussed as well. Concluding Monte-Carlo Simulations of Ullah dealing with internal and forward electron emission are presented and compared to our results.

Kurzfassung

Die folgende Arbeit behandelt die beschusswinkelabhängige elektronische Anregung in MIM (Metal-Isolator-Metal) Systemen und Einkristallen. Der Fokus dieser Arbeit liegt hierbei auf der Untersuchung von sowohl externer als auch innerer Elektronenemission, wobei zur Beschreibung der letzteren ein ballistisches Transportmodell entwickelt wird.

Im Fall der externen Emission wird die Energie-, die Beschusswinkel- und die Kristallstrukturabhängigkeit für $5\text{-}10\text{ keV Ar}^+ \rightarrow \text{Ag}$ studiert und gezeigt, dass die resultierenden Ausbeuten durch existierende Modelle von Baragiola und Sroubek beschrieben werden können. Es ist darüber hinaus innerhalb des Sroubek schen Hot-Spot Modells möglich, die lokal erhöhte Elektronentemperatur im Einschlaggebiet zu bestimmen. Unter Verwendung dieser Temperatur, einiger Modellannahmen und einer von Kovacs modifizierten Version des Richardson-Dushman Formalismus können so die numerischen Werte für die externe Elektronenausbeute berechnet werden.

Für die innere Emission wird eine klare Beschusswinkelabhängigkeit gemessen, indem die innere Ausbeute beim Übergang von senkrechtem zu streifendem Einfall um eine Größenordnung abnimmt. Dieser Rückgang ist unabhängig von der Projektilenergie sowie der Schichtdicke der beschossenen Deckelektrode. Ein weiteres wichtiges Resultat ist der für verschiedene Beschusswinkel nahezu unveränderte biasspannungsabhängige Umpolungspunkt der inneren Emission. Dieses Resultat kann mithilfe des Meyer schen Zwei-Temperatur Modells verstanden werden. Dieses verknüpft den biasspannungsabhängigen Umpolungspunkt mit einer am Oxid herrschenden lokal erhöhten Elektronentemperatur. Für hohe Temperaturen wird hier ein linearer Zusammenhang beobachtet, bei welchem die Steigung von der Bandstruktur am Interface abhängt. Im weiteren Verlauf wird gezeigt, dass sowohl die Temperaturabhängigkeit des chemischen Potentials als auch die globale beschussinduzierte Aufheizung der Probe vernachlässigt werden können.

Abschließend wird ein anisotropes Modell entwickelt, welches auf dem ballistischen Modell von Baragiola basiert. Es wird demonstriert, dass das Abklingen der normierten inneren Ausbeute größtenteils verstanden werden kann, wenn angenommen wird, dass die innere Emission durch heiße Elektronen dominiert wird. Diese an der Oberfläche angeregten Ladungsträger weisen eine Winkelverteilung auf und bewegen sich anisotrop innerhalb eines Transportkegels in Richtung des vergrabenen Oxids. Dazu wird die vereinfachte Behandlung von Phänomenen wie Streuung, Transmission und anderen Anregungsmechanismen diskutiert. Abschließend werden die Resultate Monte-Carlo Simulationen von Ullah gegenüber gestellt, welcher die innere Emission sowie die Elektronenemission in Vorwärtsrichtung untersucht.

1 Einleitung

Wenn ein Projektil auf einen Festkörper trifft, so wird es in diesem solange abgebremst, bis es in ihm zur Ruhe kommt oder ihn auf der Rückseite wieder verlässt.

Dieses im Makroskopischen (z. B. in der Ballistik) allseits bekannte Prinzip lässt sich ebenfalls auf mikroskopischer Skala (z. B. bei Plasma-Wand-Wechselwirkung) beim Auftreffen von energetischen Ionen auf eine Oberfläche beobachten. Hierbei gibt das Ion beim Aufprall seine Energie durch zwei separate Wechselwirkungsprozesse an einerseits Festkörperatome und andererseits Festkörperelektronen ab. Im ersten Fall kommt es durch Stoßprozesse zu einer billardartigen Stoßkaskade, welche zur Emission angestoßener Atome aus dem Festkörper führen kann. Dieser Prozess wird im Allgemeinen als Zerstäubung des Festkörpers bzw. *Sputtering* bezeichnet. Im zweiten Fall kommt es durch verschiedenartige Wechselwirkungsprozesse zwischen Projektil und Elektronen zur Anregung sog. *heißer* Elektronen, welche ebenfalls im Rahmen eines Emissionsprozesses den Festkörper verlassen können.

Um die kinetisch induzierte elektronische Anregung zu studieren, wurden in der Vergangenheit viele Experimente zur ioneninduzierten Elektronenemission ins Vakuum durchgeführt und unter Annahme verschiedener Modelle [1, 2] interpretiert. Ein Nachteil dieser Technik besteht jedoch darin, dass nur jene Elektronen untersucht werden können, welche genug Energie zum Überwinden der Oberflächenbarriere und einen Impuls Richtung Oberfläche aufweisen. Die Elektronen, welche eine geringere Energie oder eine andere Drift-Richtung aufweisen, können hierbei jedoch nicht erfasst werden. Um Zugriff auf diese *inneren* angeregten Elektronen zu bekommen, gibt es zwei verschiedene Ansätze:

- Zum einen gibt es in der Literatur diverse Experimente zur sog. *Forward Electron Emission* [3]. In diesen (zumeist im MeV durchgeführten) Experimenten werden dünne Folien mit Projektilen beschossen, wodurch aufgrund der begrenzten Schichtdicken im Nanometer-Bereich Elektronen in Richtung des Projektils aus der Rückseite der Folie emittiert werden können. Diese Experimente haben den Vorteil, dass je nach gewählter Schichtdicke das tiefenabhängige Anregungsprofil der Projektile abgebildet werden kann. Der Nachteil dieser Herangehensweise besteht aber darin, dass auch bei der Emission auf der Rückseite die Elektronen die Oberflächenbarriere überwinden müssen.
- Zum anderen gibt es den Ansatz der Dünnschichtsysteme wie Schottky-Dioden [4, 5] oder Metall-Isolator-Metall-Systeme [6]. In diesen Dünnschichtsystemen wird am Interface zwischen Metall und Isolator/Halbleiter durch die Isolator-Bandlücke bzw. Schottky-Barriere eine energetische Barriere für Elektronen realisiert, welche

in vielen Fällen kleiner als die Austrittsarbeit ist. Der Nachweis heißer Ladungsträger erfolgt durch Messung eines ioneninduzierten Stroms durch die Barriere (*Interne Emission*). Zudem bietet dieser Zugang die Möglichkeit, durch Elektron-Loch-Paar-Anregung erzeugte *heiße* Löcher zu detektieren, welche ebenfalls zum gemessenen Stromsignal beitragen können. Eine Einschränkung dieser Technik ist jedoch, dass die Eindringtiefe der Projektile geringer als die Schichtdicke der beschossenen Metallschicht sein muss, da sonst die isolierende Barriere durch das Einbringen beschussinduzierter Defekte zerstört werden kann.

Wie bereits in der Dissertation von Stefan Meyer [7] gezeigt worden ist, eignen sich Metall-Isolator-Metall-Systeme (MIM-Systeme) zur Detektion kinetisch erzeugter heißer Ladungsträger, welche als beschussinduzierte Ströme durch die als Isolator fungierende Oxidschicht gemessen werden können. Darüber hinaus wurde demonstriert, dass die Ausbeute der Elektronen durch die Oxidschicht energie- sowie schichtdickenabhängig ist [8]. Darauf aufbauend wurde in der Arbeit von Thorsten Peters [9] die Beschreibung um den Einfluss des Projektil-Ladungszustandes auf die innere Elektronenausbeute erweitert.

Während es zur externen Elektronenemission ins Vakuum eine Fülle an Veröffentlichungen und theoretischen Beschreibungen gibt [1, 10-14], wirft die beschussinduzierte innere Elektronenausbeute nach wie vor Fragen auf.

- In einem ersten Ansatz zum Verständnis der inneren Ausbeuten wurde von Stefan Meyer [15] ein Zwei-Temperaturen Modell entwickelt, in welchem die beschussinduzierte Anregung durch eine räumlich und zeitlich lokalisierte Erhöhung der Elektronentemperatur am Metall-Isolator-Interface beschrieben werden konnte.
- Es gibt außerdem einen Ansatz von Ray et al. [16], in welchem ein von Z. Sroubek entwickeltes Sub-Threshold Emissionsmodell für die externe Elektronenemission zur Beschreibung eines Metall-Isolator-Halbleiter-System adaptiert wurde.
- In einem von Kovacs [17] entwickelten (auf Monte-Carlo-Simulationen basierenden) Modell werden Elektronenanregungsprofile angenommen und geprüft, inwieweit diese nach ballistischem Transport zur inneren Emission beitragen.
- Kürzlich wurde zudem von Ullah et al. ein Monte-Carlo Modell vorgestellt, welches im Rahmen seiner Annahmen dazu in der Lage ist, die Projektil-Energieabhängigkeit der inneren Emission zu reproduzieren [18].

In der vorliegenden Arbeit soll darauf aufbauend durch die Variation des Beschusswinkels (relativ zur Oberflächennormalen) mehr Einblick in die physikalischen Prozesse von Elektronenanregung, -transport und -emission gewonnen werden. Mit wachsendem Auftreffwinkel kommt es bei unveränderter Primärenergie zu einer Reduzierung der Eindringtiefe des Projektils, wodurch der Schwerpunkt der elektronischen Anregung relativ zur Lage der Barriere in Richtung Oberfläche verschoben wird. Als Ergebnisse werden nähere Informa-

tionen über den Einfluss der Anisotropie in Anregung und Transport der Elektronen erwartet.

Zur Bearbeitung der Aufgabenstellung wird erst allgemein in Kapitel 3 die Funktionsweise eines MIM-Systems durch eine weiterentwickelte Version des Zwei-Temperaturen Modells vorgestellt. Es wird außerdem geprüft, inwieweit sich gemessene Ausbeuten aus Experimenten zur ballistischen Elektronenmikroskopie (BEEM [19, 20]) dazu eignen, die im Modell verwendete WKB-Transmission zu ersetzen.

Ein Ziel dieser Arbeit besteht darin, die bereits aus der Literatur bekannten Ergebnisse für die externe kinetische Elektronenemission hinsichtlich Energie- und Winkelabhängigkeit für unser Modellsystem Argon auf Silber zu bestätigen (Kapitel 6). Die vorgestellten Konzepte werden dann für die innere Elektronenemission adaptiert und es wird studiert, was sich beim Übergang von externer zu innerer Elektronenemission ändert.

Hierauf folgend (Kapitel 8) werden die Ergebnisse der Energie- und Winkelabhängigkeit der inneren Elektronenemission zunächst im Rahmen qualitativer Überlegungen diskutiert, welchen Einfluss der Beschusswinkel auf die für die innere Emission wichtigen physikalischen Größen hat. Danach wird der Einfluss des Beschusswinkels des Projektils auf den elektronischen Transport im Festkörper untersucht, indem verschiedene Modellannahmen bezüglich anisotropischer Effekte bei Elektronenanregung und transport gemacht werden. Im weiteren Verlauf wird das Modell von Ullah diskutiert, welches von isotroper Anregung ausgeht und die inneren Ausbeuten durch ein Monte-Carlo Transportmodell reproduziert. Zuletzt wird der Bogen zur Forward Electron Emission geschlagen, und Ergebnisse aus beiden Techniken zur Untersuchung der Emission in Projektilrichtung gegenübergestellt.

Im Anhang werden gesammelte Erkenntnisse bei der Verwendung von MIM-Systemen präsentiert. In einem weiteren Abschnitt wird die Physik des vielfach eingesetzten Softwarepakets SRIM diskutiert und abschließend ein Formalismus von Biersack vorgestellt, mit welchen die Berechnung der Winkelverteilung von Projektilen im Festkörper möglich ist.

2 Grundlagen der Elektronenemission

2.1	Nuclear Stopping & Electronic Stopping.....	7
2.2	Elektronischer Transport.....	9
2.3	Modelle der externen Elektronenemission.....	11
2.3.1	Ballistische Elektronen.....	11
2.3.2	Surface Assisted Kinetic Electron Emission.....	14
2.3.3	Energy-Broadening Modell & Hot-Spot Modell	16

2.1 Nuclear Stopping & Electronic Stopping

Wenn ein Projektil auf eine Festkörperoberfläche trifft, gibt es seine mitgeführte Energie E_p durch verschiedene Wechselwirkungsprozesse an den Festkörper ab, bis das Projektil den Festkörper wieder verlässt (z. B. durch Rückstreuung) oder in ihm zur Ruhe kommt (Implantation). Der Energieverlust des Projektils pro zurückgelegtem Wegintervall dR wird mithilfe der sog. Stopping Power dE_p/dR beschrieben, welche sich aus Nuclear Stopping $dE_p/dR|_n$ und Electronic Stopping $dE_p/dR|_e$ zusammensetzt. Der Einfachheit halber werden beide Größen in der Regel als unabhängig voneinander behandelt [21], d. h.:

$$\frac{dE_p}{dR} = \left. \frac{dE_p}{dR} \right|_n + \left. \frac{dE_p}{dR} \right|_e \quad (2.1)$$

- Beim *Nuclear Stopping* [21] kommt es beim Eindringen des Projektils in den Festkörper in Abhängigkeit der Projektilenergie zu einer Kaskade billardartiger Stöße, sodass Festkörperatome in Bewegung versetzt und beim Erreichen der Oberfläche emittiert werden können. Dieser Prozess kommt zum Erliegen, wenn die Energien von Projektil und den angestoßenen Festkörperatomen nicht mehr ausreichen, um andere Festkörperatome von ihren Gitterplätzen zu stoßen.
- Im *Electronic Stopping* [22] werden alle Prozesse vereint, in welchen Energie von Projektilen und Festkörperatomen ins Elektronensystem des Festkörpers transferiert wird. Die Anregung sog. *heißer* Elektronen (mit einer Energie größer als der Fermi-Energie) geschieht hier auf verschiedene Arten: Zum einen gibt es das Modell der elektronischen Reibung (engl. *Electronic Friction* [23]), in welchem das Projektil durch ein (im Metall nahezu) freies Elektronengas pflügt, und die Elektronen durch inelastische Streuprozesse anregt. Ein weiterer bekannter Anregungsmechanismus ist der *Electron Promotion* - Prozess [24], bei welchem durch einen binären, harten Stoß zweier Atome ein Quasimolekül gebildet wird. Durch den Überlapp der Elektronenwellenfunktionen beider Stoßpartner können einzelne Elektronen energetisch bis über die

Fermi-Energie angehoben werden, und dort infolge resonanter, autoionisierender Übergänge als heiße Elektronen in freie Zustände des Leitungsbands transferiert werden. Nach dem Stoßprozess bleibt dabei in einem der Stoßpartner ein durch das abgegebene heiße Elektron erzeugtes Loch zurück, welches später durch Augerprozesse wieder aufgefüllt wird, wodurch weitere Elektronen angeregt werden können.

In Abbildung 2.1 werden die Beiträge von *Electronic Stopping* und *Nuclear Stopping* zur gesamten Stopping Power in Abhängigkeit der Projektilenergie für die in dieser Arbeit genutzte Projektil-Target-Kombination (Argon \rightarrow Silber) mithilfe des SRIM/TRIM Softwarepakets [25]) dargestellt. Die genaue Funktionsweise des von Biersack & Ziegler entwickelten Programms wird in Anhang A.2 näher erläutert.

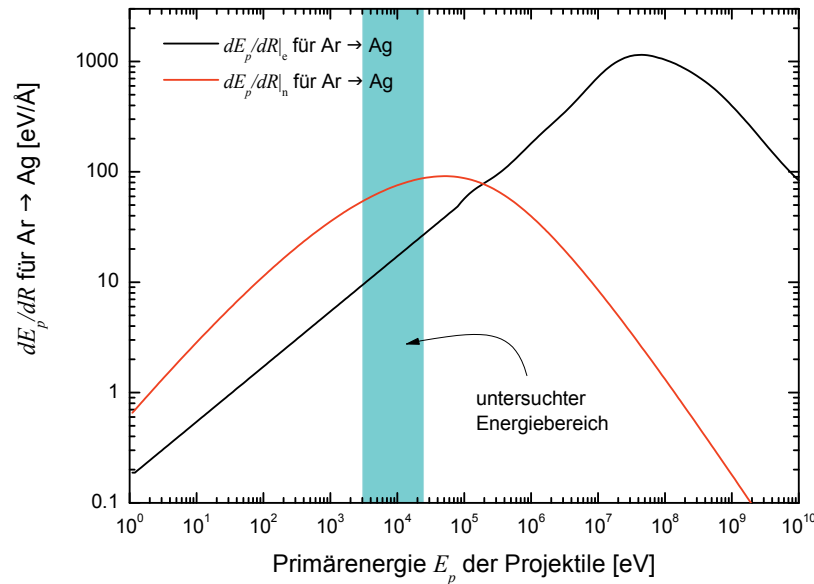


Abbildung 2.1: Nuclear und Electronic Stopping für die Projektil-Target-Kombination: Ar \rightarrow Ag. Der in dieser Arbeit untersuchte Bereich ist blau eingefärbt (siehe auch Abbildung A.7).

Nuclear Stopping ist in diesem Fall für niedrige Projektilenergien der dominierende Energieverlustprozess und weist ein Maximum bei ungefähr 50 keV auf. Für sehr hohe Energien fällt dieser Prozess jedoch ab und leistet praktisch keinen Beitrag mehr. *Electronic Stopping* ist für niedrige Energien zunächst der schwächere Verlustprozess, übertrifft die *Nuclear Stopping Power* aber für größere Energien ab 1 MeV und erreicht sein Maximum bei 100 MeV, um bei größeren Energien ebenfalls wieder abzuklingen. Der in dieser Arbeit untersuchte Projektil-Energiebereich ist blau eingefärbt und liegt bei 5-15 keV. In diesem Bereich ist die *Nuclear Stopping Power* um knapp eine Größenordnung größer als die *Electronic Stopping Power*, sodass das Projektil mehr Energie an die Festkörperlátome als an das eingebettete Elektronensystem verliert. Tatsächlich wird aber nach Modellrechnungen, z. B. beim Beschuss einer Silberoberfläche mit 5-keV Silberatomen, temporär über die Hälfte der Projektilenergie ins Elektronensystem transferiert, da die zu Bewegung an-

geregten Festkörperatome (sog. *Recoils*) wiederum durch *Electronic Stopping* Elektronen anregen können [26]. Auf großen Zeitskalen (einige ps) kommt es durch Elektron-Phonon-Kopplung allerdings zu einem Rückfluss der Energie in die Teilchendynamik, wodurch letztlich der gesamte Festkörper aufgeheizt wird.

Der über weite Energiebereiche linear verlaufende Anstieg von $dE_p/dR|_e$ impliziert eine Geschwindigkeitsproportionalität der *Electronic Stopping Power*, welche zum Modell der Stokesartigen elektronischen Reibung führt. Das neben Fermi-Teller und Firsov [22] am weitesten verbreitete Modell der elektronischen Reibung wurde von Lindhard und Scharff entwickelt [27]. In ihrem Modell wird angenommen, dass das Projektil im Festkörper durch ein zwischen den Metallionenrümpfen eingebettetes, quasifreies Elektronengas der Valenzelektronen pflügt und diese inelastisch am abgeschirmten Coulombpotential des sich bewegenden Projektils gestreut werden. Für die mathematische Formulierung der *Electronic Stopping Power* nach Lindhard-Scharff ergibt sich laut [27]:

$$\left. \frac{dE_p}{dR} \right|_{e,LS} = \frac{8\pi e^2 a_0 N Z_1^{7/6} Z_2}{(Z_1^{2/3} + Z_2^{2/3})^{3/2}} \left(\frac{E_p}{M_1} \right)^{1/2} = K_L E_p^{1/2} \quad (2.2)$$

Die Größe K_L wird als Lindhard-Scharff Konstante bezeichnet und vereint systemspezifische Größen wie die Kernladungen Z_1 und Z_2 von Projektil und Festkörperatom, Projektilmasse M_1 sowie allgemeine Konstanten wie Elementarladung e und bohrschem Radius a_0 .

2.2 Elektronischer Transport

Nach der beschussinduzierten elektronischen Anregung bewegen sich die heißen Elektronen durch den Festkörper und können diesen beim Erreichen der Oberfläche (oder allgemein: einer Grenzschicht) verlassen (Abbildung 2.2), sofern ihre Energie zur Überwindung der entsprechenden Energiebarriere ausreicht.

Im Rahmen dieser Arbeit wird die Bewegung der Elektronen durch ein ballistisches Transportmodell [28] beschrieben, in welchem die Elektronen durch den Festkörper propagieren und an (1) Atomrümpfen und/oder (2) anderen Elektronen gestreut werden können. Die Wahrscheinlichkeit, dass ein im Abstand x von der Grenzfläche angeregtes Elektron ballistisch die Oberfläche erreicht, kann bei isotropem Transport laut Sternglas [29] mithilfe von Gleichung (2.3) bestimmt werden:

$$p(x) = \frac{1}{2} \exp\left(-\frac{x}{\lambda}\right) \quad (2.3)$$

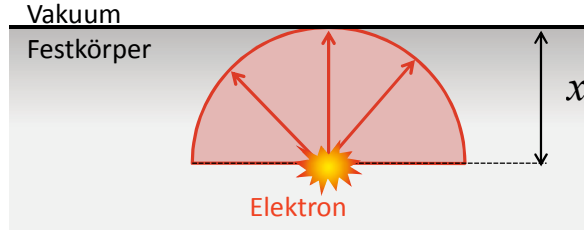


Abbildung 2.2: Ballistischer Transport eines angeregten Elektrons zur Oberfläche. Die angeregten Elektronen bewegen sich isotrop innerhalb der roten Halbkugel Richtung Oberfläche.

Die entscheidende Größe ist die *Abklinglänge* λ , welche die Strecke angibt, nach welcher der Anteil der angeregten Elektronen im Mittel auf $1/e$ abgefallen ist. Diese Abklinglänge setzt sich laut [28, 29] aus der *inelastischen mittleren freien Weglänge* λ_{in} und der *elastischen mittleren freien Weglänge* λ_{tr} zusammen.

$$\lambda = \left(\frac{1}{3} \lambda_{tr} \lambda_{in} \right)^{1/2} \quad (2.4)$$

Während Erstere primär für den Energieverlust der heißen Elektronen zuständig ist, ändert Letztere nur deren Driftrichtung, sodass durch die Richtungsänderungen die Laufstrecke des heißen Elektrons verlängert wird, bevor dieses aufgrund inelastischer Streuprozesse seine Anregungsenergie wieder abgibt.

- Bei der Streuung an Atomrümpfen wird aufgrund des großen Massenunterschieds von Elektronen und Atomen nur ein Bruchteil der Energie übertragen, sodass bei solch einem Streuprozess primär die Richtung des Elektrons geändert wird. Die elastische mittlere freie Weglänge [30] skaliert zwischen einer (amorphes Material) und vielen Atomlagen (kristalline Struktur).
- Beim Streuprozess zweier Elektronen werden im Mittel 50 % der Anregungsenergie übertragen, sodass Energie und Richtung maßgeblich geändert werden [31]. Die mittlere freie Weglänge λ_{in} zwischen zwei inelastischen Stößen kann u. a. mithilfe der Lebensdauer τ [32, 33] der angeregten Elektronen berechnet werden, welche sich laut Quinn [34] aus dem Imaginärteil \Im der reziproken dielektrischen Funktion $\varepsilon(\Delta k, \Delta E_e)$ des untersuchten Materials bestimmen lässt:

$$\frac{1}{\tau} = 2 \frac{e^2}{\pi} \int \frac{dk^3}{4\pi k^2} \Im \left[\frac{1}{\varepsilon(\Delta k, \Delta E_e)} \right] \quad (2.5)$$

In Gleichung (2.5) stehen k sowie E_e für Wellenvektor bzw. die Energie eines angeregten Elektrons. Aus τ kann über die kinematische Beziehung $\lambda_{in} = v_e \cdot \tau$ (mit v_e als Geschwindigkeit des Elektrons) die mittlere freie Weglänge λ_{in} gewonnen werden, welche u. a. von Kanter [35] für den Fall heißer Elektronen in Silber (Abbildung 2.3) berechnet worden ist.

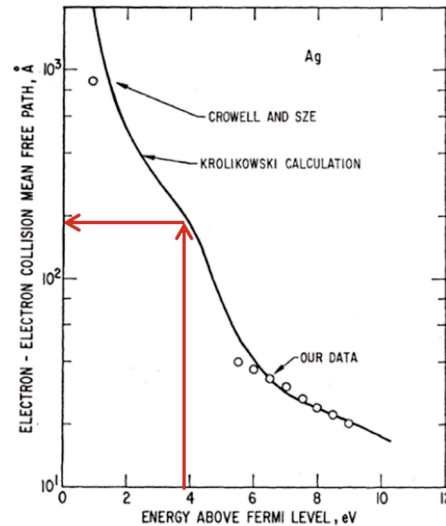


Abbildung 2.3: Inelastische mittlere freie Weglänge für angeregte Elektronen in Silber [35]. In Rot eingezeichnet sind Elektronen, die in unseren Experimenten (Kapitel 6 & 8) interessant sind.

Im Rahmen dieser Arbeit werden (laut Gleichung (2.10)) durch elektronische Reibung angeregte Elektronen mit Anregungsenergien von bis zu 4 eV oberhalb des Fermi-Niveaus erwartet, für die laut Abbildung 2.3 (roter Pfeil) eine inelastische mittlere freie Weglänge von ungefähr $\lambda_{in} \approx 20$ nm zu erwarten ist. Laut Literatur [12, 31, 36] sind für Elektronen mit geringer Anregungsenergie elastische Streuprozesse wahrscheinlicher als inelastische, sodass gemäß Gleichung (2.4) die Abklinglänge erwartungsgemäß kleiner als 20 nm sein sollte. Dies stimmt ungefähr mit Experimenten zur inneren Elektronenemission von Stefan Meyer [15], in denen für angeregte Elektronen in Silber eine effektive Abklinglänge für Elektronen von $\lambda = 10$ nm gemessen worden ist.

2.3 Modelle der externen Elektronenemission

Erreicht ein angeregtes Elektron im Zuge seiner Bewegung die Oberfläche, so kann es unter Aufbringung der Austrittsarbeit emittiert werden. In diesem Abschnitt werden das Modell der ballistischen Elektronen sowie zwei Sub-Threshold Modelle vorgestellt.

2.3.1 Ballistische Elektronen

Im ballistischen Emissionsmodell werden die Elektronen als klassische Teilchen betrachtet, welche mit ihrer Energie $E_e = E_{exc} + E_F$ (relativ zur Unterkante des Leitungsbandes mit E_{exc} als Anregungs- und E_F als Fermi-Energie) im Festkörper in Richtung Oberfläche propagieren.

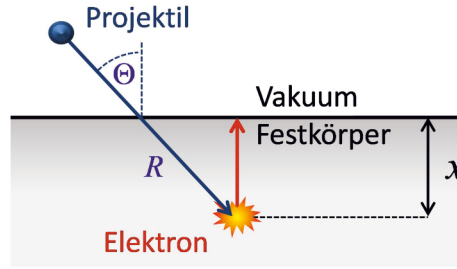


Abbildung 2.4: Modell der ballistischen Elektronenemission. Elektronen werden vom Projektil auf dessen Weg R im Abstand x zur Oberfläche angeregt.

Ein grobes Schema des Emissionsprozesses ist in Abbildung 2.4 zu sehen, bei welchem die Oberfläche der Einfachheit halber als planar angenommen wird¹. Auf dem Weg R regt das unter dem Winkel Θ in den Festkörper eingedrungene Projektil heiße Elektronen im Abstand x zur Oberfläche an, welche diese über alle Richtungen gemittelt mit der Wahrscheinlichkeit aus Gleichung (2.3) erreichen. Die Projektilwegstrecke R und der Abstand x lassen sich unter der Annahme, dass sich das Projektil gradlinig durch den Festkörper bewegt, durch die geometrische Beziehung $x(R, \Theta) = R \cos(\Theta)$ miteinander verknüpfen.

Die kinetisch induzierte Elektronenausbeute ins Vakuum kann in erster Näherung laut Ferrón [37] über das Wegintegral des Produkts aus Anregungs-, Transport- und Emissionswahrscheinlichkeit der angeregten Elektronen bestimmt werden:

$$\Gamma_{ext} = C \int_0^{R_{max}} N(R) P(x(R)) dR \quad (2.6)$$

Der Anregungsprozess steckt im Term $N(R)dR$, welcher die Anzahl der vom Projektil auf dem Wegstück dR im Mittel erzeugten angeregten Elektronen angibt. Der ballistische Transport $P(x(R))$ der Elektronen kann durch den Ausdruck in Gleichung (2.3) beschrieben werden, während die Größe C die Transmissionswahrscheinlichkeit eines Elektrons durch die Oberfläche ins Vakuum beinhaltet und in erster Linie von der Anregungsenergie E_{exc} der angeregten Elektronen und der Austrittsarbeit W abhängt. Die obere Grenze der Wegintegration R_{max} gibt die Strecke an, welche das Projektil zurücklegen kann, bevor es durch Nuclear und Electronic Stopping so viel Energie verloren hat, dass es kein Elektron mehr mit einer Anregungsenergie $E_{exc} \geq W$ anregen kann.

In Referenz [38] wird die Gleichung (2.6) weiter umgeformt, wobei die Anregungsdichte $N(R)$ durch die auf die mittlere Anregungsenergie \bar{E}_{exc} normierte Electronic Stopping Power $dE_p/dR|_e$ ersetzt wird. Diese fällt laut SRIM (siehe Abbildung 8.10) für große Abstände auf null ab, sodass die obere Integrationsgrenze R_{max} ohne Änderung des Endergeb-

¹ Eine gute Abschätzung, ob die Oberfläche für die Elektronenwellen als planar angenommen werden kann, besteht darin, die de-Broglie Wellenlänge der Atome mit der Oberflächenrauigkeit zu vergleichen. [12]

nisses auf unendlich angehoben werden kann. Durch diese Modifikationen kann die auf eine Integration über den Abstand x umgeschriebene Gleichung (2.6) der ballistischen Elektronenausbeute durch folgende Beziehung ersetzt werden:

$$\Gamma_{ext}^{ball}(\Theta) = \frac{C}{2\bar{E}_{exc}} \int_0^\infty \frac{dE_p}{dx} \bigg|_e \cdot \exp\left(-\frac{x}{\lambda}\right) dx \cdot \frac{1}{\cos(\Theta)} \quad (2.7)$$

An dieser Stelle werden von Ferrón zwei Annahmen gemacht [37]:

- Zum einen wird angenommen, dass das Projektil innerhalb der sog. *Escape Depth*² λ_{esc} eine konstante Electronic Stopping Power $dE_p/dx|_e$ aufweist, sodass dieser Term vor das Integral gezogen werden kann. λ_{esc} wird in diesem Fall mit der Abklinglänge λ abgeschätzt.
- Zum anderen wird angenommen, dass das Projektil innerhalb von λ_{esc} keine stoßinduzierte Richtungsänderung erfährt und sich geradlinig durch den Festkörper bewegt.

Durch Berücksichtigung der Annahmen und Integration von Gleichung (2.7) über x ergibt sich eine inverse Beschusswinkelabhängigkeit der externen Elektronenausbeute Γ_{ext}^{ball} :

$$\Gamma_{ext}^{ball}(\Theta) = \frac{C}{2\bar{E}_{exc}} \cdot \frac{dE_p}{dx} \lambda_{esc} \frac{1}{\cos(\Theta)} \quad (2.8)$$

Diese stimmt gut mit der Literatur [37, 39-42] überein und wird auch in unseren Experimenten (siehe Kapitel 6.4) bestätigt. Um die kinetische Elektronenausbeute in Abhängigkeit der Projektilenergie zu bestimmen, kann der Ausdruck dE_p/dx in Gleichung (2.8) nach Lindhard-Scharff durch Gleichung (2.2) ersetzt werden, sodass sich mit $E_p^{1/2}$ eine Geschwindigkeitsproportionalität der kinetischen Elektronenausbeute ergibt.

$$\Gamma_{ext}^{LS} \propto \frac{CK_L \lambda_{esc}}{2\bar{E}_{exc}} \frac{1}{\cos(\Theta)} \cdot \sqrt{E_p} \quad (2.9)$$

Dieses Emissionsmodell ist jedoch nur dann gültig, wenn die angeregten Elektronen eine Mindestanregungsenergie von $\bar{E}_{exc} \geq W$ aufweisen. Den maximalen Energieübertrag erfährt ein Elektron bei einem Frontalzusammenstoß mit einem Projektil, bei welchem E_{max} übertragen wird [14]:

² Die Escape Depth λ_{esc} bezeichnet die Tiefe, in welcher ein erzeugtes Elektron die Oberfläche gerade noch erreichen kann. Bei Baragiola [12] wird z.B. angenommen, dass ein niedrig angeregtes Elektron nach einem inelastischen Stoß nicht mehr emittiert werden kann. In diesem Fall wäre die Escape Depth λ_{esc} gleich der inelastischen mittleren freien Weglänge λ_{in} .

$$E_{\max} = 2m_e v_p (v_p + v_F) \quad (2.10)$$

Hier ist m_e die Elektronenmasse, v_p die Projektil- und v_F die Fermi-Geschwindigkeit der Elektronen. Für den Grenzfall $E_{\max} = W$ kann eine Grenzggeschwindigkeit $v_{th} = v_p$ ermittelt werden, welche das Projektil mindestens haben muss, um bei einem Stoßprozess dem Elektron genug Energie zur Emission mitgeben zu können [14].

$$v_{th} = \frac{1}{2} v_F \left[\sqrt{1 + \frac{W}{E_F}} - 1 \right] \quad (2.11)$$

Die experimentell beobachtete ioneninduzierte Elektronenemission ins Vakuum, welche mit einer Projektilgeschwindigkeit $v_p < v_{th}$ angeregt wird, kann somit nicht mit dem klassischen Modell heißer Elektronen erklärt werden. Andere Anregungsprozesse wie Electron Promotion [24] oder Augeranregung [28] weisen ebenfalls Grenzggeschwindigkeiten auf, sodass für die Beschreibung der Emission unterhalb der klassischen Schwellen sog. *Sub-Threshold* Modelle benötigt werden. Diese werden in der Literatur [10, 43, 44] in der Regel in atomaren Einheiten formuliert und sollen daher auch an dieser Stelle so wiedergegeben werden.

2.3.2 Surface Assisted Kinetic Electron Emission

Das Surface Assisted Kinetic Electron Emission – Modell (kurz: skE-Modell) [43] stellt eine nicht-adiabatische Erweiterung des zuvor diskutierten Electronic Stopping Modells von Lindhard und Scharff (Kapitel 2.1) dar. Es basiert auf dem Gedanken, dass ein durch den Festkörper propagierendes Projektil von den Festkörperelektronen als eine zeitabhängige Potentialstörung wahrgenommen wird. Durch Annäherung des Projektils an die Oberfläche kommt es zu einem zeitlich veränderlichen Wechselwirkungspotential V_{kk} , durch welches Elektronen an der Oberfläche mit dem Projektil wechselwirken können. Die Wellenvektoren k und k' bezeichnen hier Anfangs- bzw. Endzustand nach Wechselwirkung des angeregten Elektrons. Mit der vereinfachten Annahme, dass das Wechselwirkungspotential für alle (k, k') gleich ist, ergibt sich eine modifizierte Version der Stopping Power nach Lindhard-Scharff [44]:

$$\frac{dE_p}{dx} = \frac{\pi}{3} \rho^2 V^2 k_F^2 v_p \quad (2.12)$$

Die Größen k_F und ρ stehen für den Fermi-Vektor der Elektronen und ihre elektronische Zustandsdichte. Der Anstieg des Potentials durch die Annäherung des Projektils an die Oberfläche kann in guter Näherung [10] durch $V(t) = V/\cosh(2 \cdot v_p \cdot \gamma t)$ approximiert werden, wobei der Parameter γ den Charakter einer inversen Abklinglänge des Potentials ins Va-

kuum hat. Die Ausbeute der durch das skE-Modell emittierten Elektronen kann laut [10] aus folgendem Zusammenhang berechnet werden:

$$\Gamma_{skE} = \int_{E_{vac}}^{\infty} f(E_e) T(E_e) \rho dE_e \quad (2.13)$$

Die Größen $f(E_e)$ und $T(E_e)$ bezeichnen die Verteilung der ins Vakuum emittierten Elektronen sowie deren Transmissionswahrscheinlichkeit und können unter der Annahme, dass $\gamma v_p \ll (E_e - E_F)$, angenommen werden als [10]:

$$f(E_e) = \frac{\pi \rho V^2}{\gamma v_p} \exp\left(-\frac{\pi(E_e - E_F)}{2\gamma v_p}\right) \quad (2.14)$$

$$T(E_e) = \frac{1}{2} \frac{E_e - W - E_F}{E_e} \quad (2.15)$$

Mithilfe der Gleichungen (2.14) und (2.15) kann Gleichung (2.13) gelöst werden, wobei der aufgrund des Elektronenspins eingehende Faktor 2 durch einen Faktor 1/2 aus dem isotropen Transportmodell wieder kompensiert wird. Somit ergibt sich für die Ausbeute Γ_{ext}^{skE} des skE-Modells:

$$\Gamma_{ext}^{skE} = B \rho^2 V^2 \frac{2\gamma v_p}{\pi(W + E_F)} \exp\left(-\frac{\pi W}{2\gamma v_p}\right) \quad (2.16)$$

In Gleichung (2.16) sind γ und B Fitparameter, wobei Ersterer typischerweise im Bereich von $\gamma = 1$ a. u. liegt. Letzterer hingegen ist geschwindigkeitsunabhängig und hängt im Wesentlichen von der Transmissionswahrscheinlichkeit ab. Die Ausbeute Γ_{ext}^{skE} beinhaltet laut Gleichung (2.16) u. a. verschiedene, teils gravierende Annahmen [44]:

- Das präsentierte Modell ist ein Ein-Elektron-Modell, d. h. das Wechselwirkungspotential V beinhaltet nur die binäre Wechselwirkung zwischen einem Elektron und dem Projektil.
- Es gibt keine Elektron-Elektron-Wechselwirkung, d. h. angeregte Elektronen bewegen sich frei von Streuprozessen durch den Festkörper.
- Das Vorhandensein der Oberfläche stellt eine Anomalie in der Symmetrie dar, so dass das Modell bislang ausschließlich für senkrechten Beschuss gültig ist.
- Es gibt keine Grenzgeschwindigkeit des Projektils für die Elektronenemission.

Es gibt darüber hinaus Überlegungen zu einem Multi-Elektronen skE-Modell [44], in welchem die Elektronen im Festkörper untereinander wechselwirken können. Dieses Modell ist für kleine Projektilgeschwindigkeiten gültig und besitzt ebenfalls keine gültige Formulierung für winkelabhängigen Einschlag von Projektilen.

2.3.3 Energy-Broadening Modell & Hot-Spot Modell

Das „Energy Broadening“ - Modell [10, 45] ist ebenfalls ein Sub-Threshold-Modell, welches im Gegensatz zum skE-Modell auf klassischen Anregungsmechanismen wie Electronic Friction und Electron Promotion basiert. Die Idee hinter dem „Energy Broadening“ – Modell beruht nun auf der Annahme, dass sich die Energieverteilung der angeregten Elektronen, welche eine mittlere Anregungsenergie von $\bar{E}_{exc} < W$ aufweisen, durch Elektron-Elektron-Wechselwirkungen in beide Richtungen verbreitern kann, sodass einige Elektronen die Austrittsarbeit überwinden können.

Zur Beschreibung der heißen Elektronen wählt Sroubek einen statistischen Zugang [1, 2, 45], in welchem die elektronische Anregung durch eine lokal begrenzte Erhöhung der Elektronentemperatur beschrieben wird. Dieses Modell, welches die Elektronen im Kollektiv beschreibt, wird „Hot-Spot“ Modell genannt. In diesem durchfliegt Projektil im Festkörper diskrete Anregungsvolumina und regt die sich darin befindenden Elektronen an. Es wird angenommen, dass das Durchqueren eines Volumens ein Zeitintervall $\delta t = 1$ fs (= 50 a. u.) dauert, welche einerseits so lang gewählt ist, dass die Elektronen genug Zeit zum Wechselwirken haben, andererseits aber auch so knapp bemessen ist, dass die Anregung lokalisiert bleibt. Die vom Projektil auf der Strecke $v_p \delta t$ verlorene Energie dE_p lässt sich in Gleichung (2.17) über die spezifische Wärme c_e des Elektronengases der Elektronentemperatur T_e verknüpfen.

$$\left. \frac{dE_p}{dx} \right|_e \cdot v_p \delta t = k_B T_e c_e V_e \quad (2.17)$$

V_e steht für das Volumen der lokalisierten Anregung und kann über die Beziehung $V_e = v_p \cdot \delta t \cdot d_e$ gewonnen werden, in welcher d_e eine Art Streuquerschnitt des Projektils mit den Elektronen darstellt [45]. Durch die Wechselwirkung der angeregten Elektronen kommt es zu einer Verbreiterung der Energieverteilung $n(E_e)$, sodass es einen elektronentemperaturabhängigen exponentiellen Ausläufer mit „heißen“ Elektronen gibt, welche mit $E_{exc} > W$ genug Energie besitzen, um die Austrittsarbeit W überwinden zu können. Unter der Annahme, dass es keine Transporteffekte gibt und alle Elektronen ungeachtet des Orts ihrer Anregung mit $E_{exc} > W$ emittiert werden, lässt sich die Ausbeute der emittierten Elektronen laut [1] durch die Gleichung (2.18) beschreiben.

$$\Gamma_{ext}^{HS} \propto \int_{E_{vac}}^{\infty} \rho(E_e) n(E_e) dE_e \quad (2.18)$$

Die Größen $\rho(E_e)$ und $n(E_e)$ stehen hier für die elektronische Zustandsdichte und die Verteilung der angeregten Elektronen der Energie $E_e = E_F + E_{exc}$. Durch Einsetzen von $n(E_e)$,

die Annahme konstanter Zustandsdichte $\rho(E_e) = \rho(E_F)$, und nachfolgender Integration über E_e ergibt sich:

$$\Gamma_{ext}^{HS} \propto \int_{E_{vac}}^{\infty} \rho(E_e) \exp\left(-\frac{(E_e - E_F)}{k_B T_e}\right) dE_e \propto \rho k_B T_e \exp\left(-\frac{W}{k_B T_e}\right) \quad (2.19)$$

Es fällt auf, dass die lokal erhöhte Elektronentemperatur T_e in Gleichung (2.19) linear in den Vorfaktor der Boltzmann-Verteilung eingeht. Dieses Ergebnis steht scheinbar im Widerspruch zum Formalismus der thermionischen Emission nach Richardson-Dushman [46, 47], in welcher der Vorfaktor trotz ähnlicher Herangehensweise eine quadratische Temperaturabhängigkeit aufweist³.

Basierend auf Gleichung (2.17) ist es möglich, die Ausbeuten des skE-Modells direkt mit dem Hot-Spot Modell zu vergleichen. Nach Umformung von Gleichung (2.19) ergibt sich ebenso wie im skE-Modell eine inverse Geschwindigkeitsabhängigkeit des Arguments im Boltzmann-Term, sodass diese gleichgesetzt werden können. Durch diese Herangehensweise ist es möglich, einen direkten Zusammenhang von Elektronentemperatur T_e in den kleinen Anregungsvolumen, Projektilgeschwindigkeit v_p und dem Abklingparameter γ des Projektilpotentials V herzustellen.

$$\frac{2\gamma v_p}{\pi} = k_B T_e \quad (2.20)$$

Um die Gesamtanzahl der emittierten Elektronen zu bestimmen, muss berücksichtigt werden, dass das Projektil bei der Bewegung durch den Festkörper viele Anregungsvolumina V_e durchfliegt und in jedem Volumenelement Elektronen anregt (Abbildung 2.5).

Die maximale Tiefe, in welcher angeregte Elektronen den Festkörper verlassen können, wird durch die bereits in Kapitel 2.3.1 eingeführte Escape Depth λ_{esc} festgelegt. Um die Gesamtausbeute Γ_{ext}^{HS} zu bekommen, muss daher Gleichung (2.19) mit einem Faktor $\lambda_{esc}/(v_p \cdot \delta t)$ multipliziert werden, welcher die Anzahl der vom Projektil durchflogenen Volumina liefert. Mit der Abschätzung, dass die Dichte der Valenzelektronen in Silber gleich der Atomdichte ist, führt dieser Faktor zu der effektiven Anzahl der angeregten Elektronen. Wenn zudem (wie in Abbildung 2.5 veranschaulicht) der Beschusswinkel um den Winkel

³. Der Grund für den Unterschied liegt darin, dass in der Herleitung des Richardson-Dushman Formalismus [47] der dreidimensionale Fluss der heißen Elektronen durch die Oberfläche betrachtet wird und bei der Integration angenommen wird, dass sich die Elektronen in allen drei Dimensionen bewegen dürfen. Sroubek hingegen berechnet in seinem Hot-Spot Modell [1, 45] keinen Fluss bewegter Teilchen, sondern lediglich die Anzahl der Elektronen, welche nach der Anregung eine Anregungsenergie besitzen, welche größer als die Austrittsarbeit ist. In diesem Fall wird also angenommen, dass alle angeregten Elektronen (ungeachtet ihrer ursprünglichen Bewegungsrichtung) im rechten Winkel auf die Oberfläche treffen (Reduzierung auf eine Dimension).

Θ gekippt wird und die Electronic Stopping Power im Bereich $0 \leq x \leq \lambda_{esc}$ konstant bleibt, nehmen die Anzahl der Volumina und somit auch die Ausbeute der emittierten Elektronen mit $1/\cos(\Theta)$ zu.

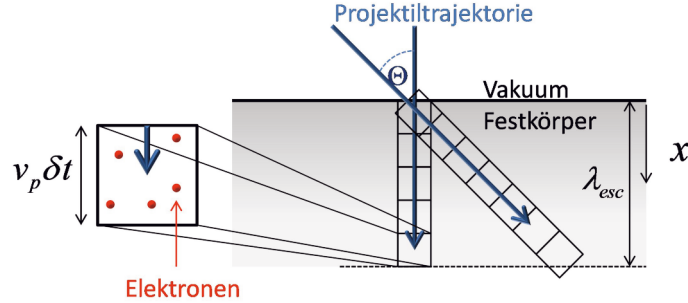


Abbildung 2.5: Einfluss des Beschusswinkels auf das Sroubek'sche Hot-Spot Modell. Das Projektil (blau) fliegt durch den Festkörper und regt in kleinen Zellen Elektronen (rot) an. Mit zunehmendem Beschusswinkel Θ nimmt die Anzahl durchflogener Zellen innerhalb von λ_{esc} zu.

Es ist somit unter Verwendung des Hot-Spot Modells (im Gegensatz zum skE-Modell) möglich, eine beschusswinkelabhängige Beschreibung der externen Elektronenemission im Sub-Threshold Bereich zu liefern. Vergleicht man die endgültige Version für Γ_{ext}^{HS} in Gleichung (2.21) mit Γ_{ext}^{ball} in Gleichung (2.8), so stellt sich heraus, dass sich sowohl im Modell der ballistischen Elektronen als auch im modifizierten Hot-Spot Modell dieselbe inverse Beschusswinkelabhängigkeit für die kinetische Elektronenausbeute Γ ergibt.

$$\Gamma_{ext}^{ball}(\Theta) = \frac{1}{2} \left(\frac{4}{3} \pi r^3 \right) \rho \left(\frac{\lambda_{esc}}{v_p \delta t} \right) \frac{k_B T_e}{\cos(\Theta)} \cdot \exp \left(-\frac{W}{k_B T_e} \right) \quad (2.21)$$

Der Vorfaktor $V_e = (4\pi r^3)/3$ beschreibt hier die Größe des radialsymmetrischen Anregungsvolumens, während der Faktor $1/2$ berücksichtigt, dass nur im Mittel die Hälfte aller Elektronen Richtung Oberfläche propagiert. Die Größe r lässt sich durch den Vergleich mit dem Durchmesser $v_p \delta t$ eines Volumens V_e abschätzen und liegt im Fall von 70-eV O-Projektilen bei rund $r = 4.1$ a.u. [45].

An dieser Stelle muss angemerkt werden, dass die hier vorgestellten Modelle, insbesondere die Modelle von Sroubek und Lörinčík in Kapitel 2.3.2 & 2.3.3, je nach gewählten Modellannahmen Abweichungen in der endgültigen Form der Ausbeute aufweisen. Die hier getroffenen Annahmen sind:

- Die Transmission in Gleichung (2.15) wurde basierend auf [10] gewählt und kann auch anders (z. B. gleich eins) angenommen werden.
- Die spezifische Wärme in Gleichung (2.17) wurde von Sroubek in [45] als klassisch angenommen.
- Der Streuquerschnitt d_e ist in der Literatur nicht eindeutig spezifiziert und beruht auf empirischen Annahmen.

3 Metall-Isolator-Metall Modellierung

3.1	Allgemeines.....	19
3.2	Modelltheorie	20
3.2.1	Bandstruktur am Interface.....	20
3.2.2	Elektronische Anregung am Interface.....	22
3.3	Modellergebnisse	26
3.4	Einfluss des chemischen Potentials.....	30
3.5	Modell-Vorhersagen in Bezug auf das Experiment	32
3.6	BEEM-Transmission.....	36
3.7	Fazit.....	43

3.1 Allgemeines

Im vorherigen Kapitel lag bisher der Fokus auf der Untersuchung der Elektronen, welche nach der Anregung zur Oberfläche transportiert und dort emittiert werden (siehe Abbildung 2.2). Die Elektronen, welche sich in die entgegengesetzte Richtung, also tiefer in den Festkörper, bewegen, bleiben so verborgen. Durch ein Metall-Isolator-Metall-System ist es möglich, mithilfe der Bandlücke des Isolators eine innere Barriere zu realisieren, durch welche solche inneren angeregten Elektronen nachgewiesen werden können. Analog zur externen Emission kann die innere Emission durch bzw. über eine solche Barriere im Rahmen eines dreistufigen Modells beschrieben werden (siehe Abbildung 3.1).

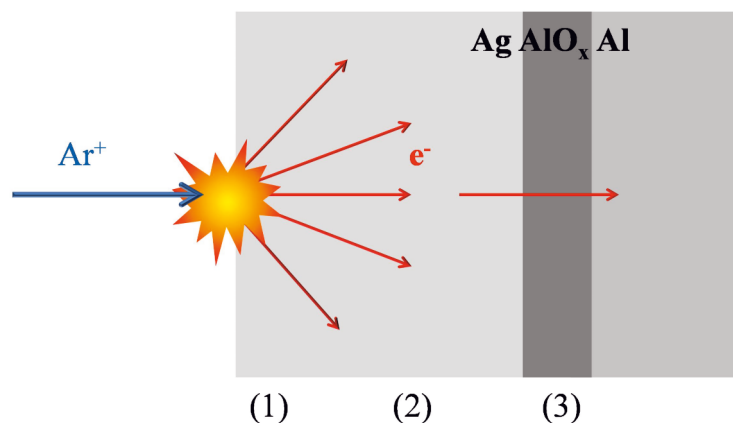


Abbildung 3.1: Dreistufiges Modell der inneren Emission bestehend aus (1) Erzeugung, (2) Transport durch die Silberschicht und (3) Transmission durch die Oxidschicht der heißen Elektronen.

- (1) Die erste Stufe beinhaltet die Erzeugung der heißen Elektron-Loch-Paare durch Projektilen oder Recoils. Hierbei können verschiedene Anregungsprozesse wie z. B. elektronische Reibung, Elektronenpromotion oder Auger-Prozesse involviert sein.
- (2) Die zweite Stufe besteht aus dem Transport der angeregten Ladungsträger durch den Silberfilm, bei welchem (laut Kapitel 2.2) die Elektronen durch Wechselwirkung mit Atomrümpfen (elastisch) oder anderen Elektronen (inelastisch) gestreut werden können. Als eine Folge der inelastischen Streuung können so auf dem Weg zur Oxidbarriere zusätzlich weitere Sekundärelektronen angeregt werden, sodass sich eine Elektronenlawine ausbilden kann. Hierbei muss jedoch berücksichtigt werden, dass die Anregungsenergie eines an der Lawine beteiligten Elektrons mit jedem inelastischen Streuprozess geringer wird.
- (3) Erreichen die angeregten Ladungsträger die Oxidbarriere, so können sie dort mit einer gewissen Wahrscheinlichkeit transmittiert und in der darunterliegenden Substratelektrode als Strom nachgewiesen werden. Der entscheidende Unterschied zur externen Emission besteht darin, dass neben angeregten (heißen) Elektronen (in Zuständen oberhalb des Fermi-Niveaus) auch heiße Löcher in Zuständen unterhalb des Fermi-Niveaus nachgewiesen werden können. Darüber hinaus ist die Barrierenhöhe nicht durch die Austrittsarbeit, sondern durch die Eigenschaften der Oxidschicht bzw. der inneren Grenzflächen bestimmt. Sowohl Elektronen als auch Löcher können die räumlich durch die Oxidschichtdicke begrenzte Barriere entweder durchtunneln oder bei genügend hoher Anregungsenergie überwinden.

3.2 Modelltheorie

Zur Beschreibung der inneren Elektronenemission wurde in der Dissertation von Meyer [7] ein Zwei-Temperaturen Modell eingeführt, welches den Anregungs- sowie Transportprozess vernachlässigt und sich explizit auf den Emissionsprozess (3) konzentriert. Dieses Modell geht ähnlich dem Sroubek schen Hot-Spot - Modell (Kapitel 2.3.3) davon aus, dass die elektronische Anregung durch eine lokal und temporär erhöhte Elektronentemperatur am Ag|AlO_x-Interface charakterisiert werden kann.

3.2.1 Bandstruktur am Interface

In Abbildung 3.2 ist die Skizze des inneren Potentialverlaufs schematisch dargestellt. Der Isolator (Mitte) trennt die obere (Rechts) von der unteren (Links) Metallschicht, wobei durch die äußere elektrische Verbindung der beiden Metallschichten die Fermi-Niveaus E_F angeglichen werden.

Haben die Elektronen bzw. Löcher ausreichend Energie, können sie die Barrieren klassisch überwinden, wobei in unserem Modell die Transmission im Leitungsband bzw. Valenzband ober- und unterhalb der Barriere vereinfacht als eins angenommen wird. Ist die Anregungsenergie der Ladungsträger kleiner als die jeweilige Barrierenhöhe, besteht eine quantenmechanische Tunnelwahrscheinlichkeit durch die Bandlücke.

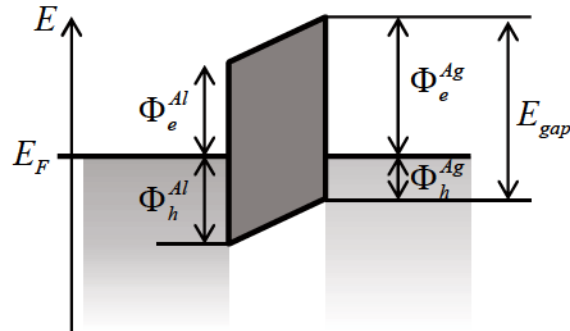


Abbildung 3.2: Schematische Skizze der inneren Barriere sowohl das rechte (Ag) als auch das linke (Al) Metall sind bis zur Fermi-Energie mit Elektronen besetzt und werden energetisch durch eine Bandlücke der Größe E_{gap} getrennt. Im Experiment wird die Silberelektrode (rechts) mit Argon-Ionen bestrahlt.

Die energetische Form des zugehörigen Barriere, durch welche die Ladungsträger tunneln müssen, wurde von Meyer in seiner Arbeit wie folgt angenommen [7]:

$$V(U_{Bias}, z) = E_F + \Phi_e^{Al} + (\Phi_e^{Ag} - \Phi_e^{Al} - U_{Bias}) \frac{z}{d_{Ox}} \quad (3.1)$$

Die Größe U_{Bias} bezeichnet eine Biasspannung, welche zwischen den beiden Metallschichten angelegt werden kann, wodurch die beiden Fermi-Niveaus der Metalle um eU_{Bias} relativ zueinander verschoben werden können. d_{Ox} bezeichnet die Breite der Barriere, d. h. die Dicke der Oxidschicht, wobei der Parameter z durch 0 ($AlO_x|Al$ -Interface) und d_{Ox} ($Ag|AlO_x$ -Interface) begrenzt wird.

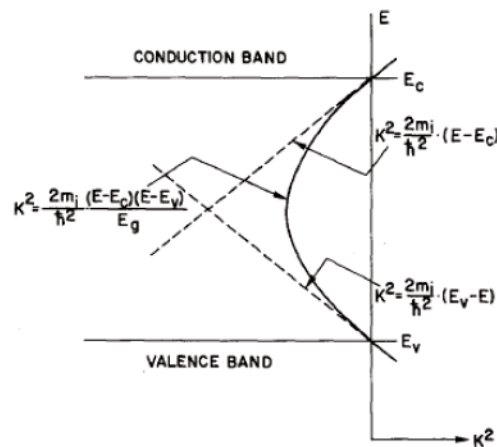


Abbildung 3.3: Wellenvektor k eines Elektrons innerhalb der Bandlücke. Skizze entnommen aus [48].

Laut Gundlach et al. [48] lässt sich (laut Abbildung 3.3) der Wellenvektor eines Elektrons innerhalb der Bandlücke durch folgenden Ausdruck approximieren:

$$k^2 = \frac{2m_e}{\hbar^2} \frac{(E_e - E_C)(E_e - E_V)}{E_{gap}} \quad (3.2)$$

Die Größe E_C und E_V stehen hier für die Unterkante des Leitungsbandes bzw. die Oberkante des Valenzbandes in der Bandstruktur des AlO_x -Isolators. Da beim Tunnelprozess nur die Senkrechtkomponente der Energie relativ zur Oxidschicht in die Tunnelwahrscheinlichkeit eingeht, muss für die Bestimmung des Potentials die Parallelkomponente abgezogen werden. Durch einige Umformungen von Gleichung (3.2) und Gleichung (3.1) ergibt sich für die von den Ladungsträgern wahrgenommene Potentialbarriere:

$$V_{2-Band}(E_e, \vartheta, U_{Bias}, z) = \frac{(E_e - V(U_{Bias}, z))(E_e - V(U_{Bias}, z) + E_{gap})}{E_{gap}} - E_e \sin^2 \vartheta \quad (3.3)$$

Der Winkel ϑ ist hier definiert als der Auftreffwinkel der durch den Film propagierenden Elektronen relativ zur Oberflächennormalen der Oxidbarriere. Aus Gleichung (3.3) lässt sich so anhand der WKB-Näherung die Tunnelwahrscheinlichkeit $T_{Ox}(E_e, \vartheta, U_{Bias})$ bestimmen [7]:

$$T_{Ox}(E_e, \vartheta, U_{Bias}) = \exp \left(-2 \int_0^{d_{Ox}} \sqrt{\frac{2m}{\hbar^2} \cdot V_{2-Band}(E_e, \vartheta, U_{Bias}, z)} dz \right) \quad (3.4)$$

3.2.2 Elektronische Anregung am Interface

Die elektronische Anregung wurde in [23, 49] von Lindenblatt im System $\text{H} \rightarrow \text{Al}(111)$ untersucht⁴, wobei herausgefunden wurde, dass sich die Energieverteilung der angeregten Elektronen (Gleichung (3.5)) und Löcher (Gleichung (3.6)) durch fallende Exponentialfunktionen beschreiben lassen. $H(E_e - E_F^{Ag})$ ist hier die Heaviside-Funktion.

$$e(E_e) \propto H(E_e - E_F^{Ag}) \exp \left(-\frac{E_e - E_F^{Ag}}{k_B T_e} \right) \quad (3.5)$$

$$h(E_e) \propto H(E_F^{Ag} - E_e) \cdot \text{sign}(E_e - E_F^{Ag}) \cdot \exp \left(\frac{E_e - E_F^{Ag}}{k_B T_h} \right) \quad (3.6)$$

Abklingparameter T_e und T_h können als fiktive Elektronen- bzw. Löchertemperaturen interpretiert werden. Diese stellen jedoch keine Gleichgewichtstemperatur im thermodyna-

⁴ In den Rechnungen von Lindenblatt nähert sich ein Wasserstoffatom mit einer Energie von ein paar eV einem Aluminium-Einkristall an und regt durch die Wechselwirkung mit Atomkernen und Elektronen Elektron-Loch-Paare an. In diesen Rechnungen wurde die auftretende Teilchenbewegung mithilfe von ab-initio Molekulardynamik berechnet, während die Bewegung der Elektronen durch zeitabhängige Dichtefunktionaltheorie beschrieben wurde.

mischen Sinne dar, sondern charakterisieren die räumlich und zeitlich begrenzte Aufheizung des Elektronengases, welche auf eine Fläche von etwa 1 nm^2 und eine Zeitdauer von weniger als 100 fs beschränkt ist. Danach wird die Anregungsenergie durch Transportprozesse wieder im Festkörper verteilt, sodass wieder ein thermisches Gleichgewicht herrscht. Mithilfe der Näherung [23], dass die Elektronentemperatur T_e im Rahmen der Messgenauigkeit gleich der Löchertemperatur T_h ist, können die elektronischen Anregungen von Elektronen und Löchern durch eine Fermi-Verteilung zusammengefasst werden.

In der Dissertation von Andreas Duvenbeck [50] wurde darauf aufbauend ein Modell der elektronischen Anregung entwickelt, welches auf einen bestehenden Molekular-Dynamik Code [51] aufgesetzt wurde. In diesem Modell wurde für das System $5\text{-keV Ag} \rightarrow \text{Ag}$ die elektronische Anregung studiert und durch eine zeit- und orts aufgelöste Elektronentemperatur parametrisiert. Es wurde beobachtet, dass der Prozess der beschussinduzierten elektronischen Anregung eine mittlere Dauer von einigen 100 fs aufweist. Die zeitliche Profil Elektronentemperatur zeigt zudem beim Einschlag ein starkes Maximum, welches eine Dauer von ungefähr 10 fs hat. Hiernach fällt die Temperatur wieder um knapp eine Größenordnung ab (siehe auch Kapitel 6.3, Abbildung 6.6).

In den folgenden Simulationen zur inneren Elektronenemission wird daher die Annahme gemacht, dass die experimentell beobachtete Elektronenemission auf dieses anfängliche Maximum in der Elektronentemperatur zurückzuführen ist. Die Elektronentemperatur T_e^{Ag} in der oberen (bestrahlten) Silberschicht nimmt hier für eine Dauer von etwa $t_{Casc} = 6.2 \text{ fs}$ einen Wert von einigen Tausend Kelvin an, wohingegen die Temperatur T_e^{Al} in der unteren Aluminiumschicht bei Raumtemperatur (300 K) liegt [15]. Die Energieverteilungen der Elektronen am $\text{Ag}|\text{AlO}_x$ - sowie am $\text{Al}|\text{AlO}_x$ -Interface ergeben sich somit zu [7]:

$$f_{Ag}(E_e, U_{Bias}, T_e^{Ag}) = \left[\exp\left(\frac{E_e - E_{null} - E_F^{Ag} + U_{Bias}}{k_B T_e^{Ag}}\right) + 1 \right]^{-1} \quad (3.7)$$

$$f_{Al}(E_e, T_e^{Al}) = \left[\exp\left(\frac{E_e - E_F^{Al}}{k_B T_e^{Al}}\right) + 1 \right]^{-1} \quad (3.8)$$

Die Größe $E_{null} = E_F^{Al} - E_F^{Ag}$ bezeichnet die Differenz der beiden Fermi-Energien und sorgt dafür, dass die Fermi-Niveaus von Silber und Aluminium im Falle einer elektrischen Kontaktierung gleichauf liegen.

In Abbildung 3.4 sind das Bändermodell aus Abbildung 3.2 mit den Werten für die Bandstruktur eines $\text{Ag}|\text{AlO}_x|\text{Al}$ -MIM-Systems (Tabelle 3.1) sowie die Fermi-Verteilungen aus Gleichung (3.7) und (3.8) mit $T_{el}^{Al} = 300 \text{ K}$ und $T_{el}^{Ag} = 12000 \text{ K}$ farblich hervorgehoben, dargestellt. Während die Aufweichung der Fermi-Kante im linken Aluminiumfilm bei

$T_e^{Al} = 300$ K kaum wahrnehmbar ist, ist sie im rechten Silberfilm aufgrund der hohen Elektronentemperatur von $T_e^{Ag} = 12000$ K deutlich zu sehen. Aufgrund des hohen Wertes von T_e^{Ag} ragt der exponentielle Ausläufer der Fermi-Verteilung f_{Ag} oberhalb der Fermi-Energie E_F^{Ag} so weit hinaus, sodass es einen signifikanten Strombeitrag durch Elektronen gibt, welche genug Energie haben, um trotz der Gegenspannung von $U_{Bias} = 1$ V die Barriere oberhalb von Φ_e^{Ag} passieren zu können.

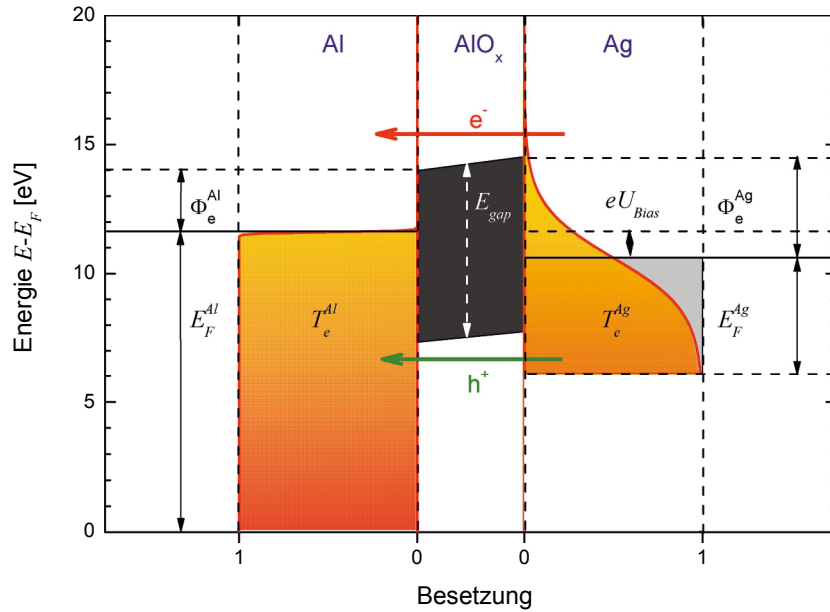


Abbildung 3.4: Potentialdiagramm eines Ag|AlO_x|Al-MIM-Kontakts im 2-Temperatur-Modell mit $T_e^{Al} = 300$ K und $T_e^{Ag} = 12000$ K. Das Fermi-Niveau von Silber ist hier exemplarisch um eU_{Bias} gegenüber dem Fermi-Niveau von Aluminium abgesenkt, wodurch der Beitrag der Elektronen (rot) abgeschwächt und der Beitrag der Löcher (grün) gestärkt wird. Die Werte für Φ_e^{Ag} und Φ_e^{Al} sind [6] entnommen.

Bezeichnung	Wert	Einheit
E_{gap}	6.7 [7]	eV
Φ_e^{Al}	2.4 [6]	eV
Φ_e^{Ag}	3.9 [6]	eV
E_F^{Al}	11.6 [52]	eV
E_F^{Ag}	5.5 [52]	eV
d_{Ox}	3.5	nm

Tabelle 3.1: Barrierenparameter für einen Ag|AlO_x|Al-MIM-Kontakt

Im Gegenzug wird durch den grauen Bereich im Silber-Leitungsband angedeutet, dass es auch einen Anteil angeregter Löcher gibt, welche durch Elektronen aus dem Aluminium wieder aufgefüllt werden können. Auch hier ist klar zu erkennen, dass ein gewisser Bruchteil tief liegender Löcher unterhalb der Bandlücke liegt, wodurch Löcher die Barriere unterhalb der Bandlücke passieren können. Der dominante Anteil des Stroms wird bei Elekt-

ronentemperaturen von mehreren Tausend Kelvin somit durch Elektronen oberhalb bzw. Löcher unterhalb der Barriere getragen [7]. In diesem Fall spricht man vom Over the Barrier -Verhalten der Ladungsträger.

Die in den Experimenten gemessene Größe ist (im Gegensatz zur externen Emission) die *Summe* aus dem Elektronenstrom (rot) oberhalb und des Löcherstroms (grün) unterhalb des Fermi-Niveaus. Die Flächenstromdichte j_z in z-Richtung ist laut Meyer [7] definiert als:

$$j_z = \frac{e}{m_e} \int_0^{\infty} p_z \cdot n_e(p_z) dp_z \quad (3.9)$$

Zur Lösung von Gleichung (3.9) wird die genaue Form der Elektronendichte $n_e(p_z)$ benötigt. Diese kann gewonnen werden, wenn man die Fermi-Verteilung der Elektronen im Metall über den Impulsraum integriert, und das Ergebnis auf das Volumen $(2\pi\hbar)^3$, welches ein Elektron im Impulsraum einnimmt, normiert [7].

$$n(p_z) dp_z = \frac{2}{(2\pi\hbar)^3} dp_z \int_{-\infty}^{\infty} \int_{-\infty}^{\infty} f_{Ag}(p_x, p_y, p_z) dp_x dp_y \quad (3.10)$$

Der zusätzliche Faktor 2 kommt hier durch die Berücksichtigung des Elektronenspins. Durch Einsetzen von Gleichung (3.10) in Gleichung (3.9) und Transformation in Kugelkoordinaten ergibt sich für die Flächenstromdichte die Anzahl an Elektronen und Löcher, welche in der Metallschicht mit Impulsbetrag p in Richtung (ϑ, φ) zur Oxidbarriere propagieren.

$$j_z = \frac{e}{m_e} \cdot \frac{2}{(2\pi\hbar)^3} \int_0^{\infty} dp \int_0^{\pi/2} d\vartheta \sin \vartheta \int_0^{2\pi} d\varphi f_{Ag}(p) \cdot p^3 \cos \vartheta \quad (3.11)$$

Um den Elektronenstrom von der Silber- in die Aluminiumschicht zu bestimmen, müssen in Gleichung (3.11) neben der Wahrscheinlichkeit $f_{Ag}(p)$, ein angeregtes Elektron im Ag zu finden, noch die Tunnelwahrscheinlichkeit $T_{Ox}(E_e, \vartheta, U_{Bias})$ durch die AlO_x -Barriere (Gleichung (3.4)) sowie die Wahrscheinlichkeit $[1 - f_{Al}(p)]$, einen freien Zustand in der Aluminiumschicht vorzufinden, ergänzt werden.

$$j_z^{Ag \rightarrow Al} = \frac{e}{m_e (2\pi\hbar)^3} \cdot \int_0^{\infty} dp \int_0^{\pi/2} d\vartheta \sin(2\vartheta) \int_0^{2\pi} d\varphi f_{Ag}(p) [1 - f_{Al}(p)] \cdot p^3 \cdot T_{Ox}(p, \vartheta) \quad (3.12)$$

Um den gesamt gemessenen Tunnelstrom zu erhalten, muss die für den Elektronenstrom aufgestellte Gleichung (3.12) auch für den Löcherstrom aufgestellt werden. Bildet man die

Differenz beider Stromanteile, so ergibt sich nach Ausführung der Integration über φ sowie der Substitution des Impulses p durch die Energie E_e der Elektronen [53]:

$$j_z(T_e^{Ag}, T_e^{Al}, U_{Bias}) = \frac{2m_e \pi e}{(2\pi\hbar)^3} \cdot \int_0^{\pi/2} d\vartheta \cdot T_{Ox}(E_e, \vartheta) \cdot \sin(2\vartheta) \cdot \int_{E_F^{Al} - E_F^{Ag} - eU_{Bias}}^{\infty} dE_e \left[f_{Ag}(E_e, T_e^{Ag}, U_{Bias}) - f_{Al}(E_e, T_e^{Al}) \right] \cdot E_e \quad (3.13)$$

Diese Gleichung entspricht der von Meyer [7] hergeleiteten Gleichung für j_z mit der Korrektur, dass die untere Grenze der Energieintegration auf die Unterkante des Silber-Leitungsbands gelegt wurde (welche ggfs. durch eine Biasspannung eU_{Bias} angehoben oder abgesenkt werden kann) und die Integration zugunsten der Numerik auf Kugelkoordinaten umgeschrieben wurde. Werden in Gleichung (3.13) nun die Elektronentemperaturen T_e^{Ag} und T_e^{Al} der beiden Metallschichten sowie der Wert für die Biasspannung U_{Bias} eingesetzt, so kann die Ausbeute der Elektronen Γ_{2TM} bestimmt werden, indem die Flächenstromdichte aus Gleichung (3.13) mit der räumlichen (A_{Casc}) und zeitlichen (t_{Casc}) Ausdehnung der elektronischen Anregung multipliziert wird [7].

$$\Gamma_{2TM} = j_z \cdot A_{Casc} \cdot t_{Casc} \quad (3.14)$$

Der benötigte Parameter $A_{Casc} = 1 \text{ nm}^2$ kann aus der lateralen Ausdehnung der Stoßkaskaden in der Molekulardynamik [50] abgeschätzt werden, während $t_{Casc} = 6.2 \text{ fs}$ in etwa der zeitlichen Dauer des anfänglichen Elektronentemperaturpeaks entspricht [15].

3.3 Modellergebnisse

Mithilfe von Gleichung (3.13) können nun die Elektronen- und Lochströme über die Barriere bestimmt werden (siehe Abbildung 3.4). Wenn bei einer angelegten Biasspannung von $U_{Bias} = 0 \text{ V}$ der Integrand aus Gleichung (3.13) gegen die Anregungsenergie $E_e - E_F$ und den Winkel ϑ aufgetragen werden, ergibt sich mit $T_e^{Ag} = 3000 \text{ K}$ und $T_e^{Al} = 300 \text{ K}$ die in Abbildung 3.5 abgebildete partielle Stromdichte $d^2 j_z / (dE_e d\vartheta)$. Wie zu erkennen ist, reicht bereits eine auf $T_e^{Ag} = 3000 \text{ K}$ erhöhte Elektronentemperatur aus, um heiße Elektronen und Löcher mit ausreichend Anregungsenergie zu erzeugen, sodass diese ober- und unterhalb der Barriere die Oxid-Bandlücke passieren können.

Da die Strombeiträge oberhalb bzw. unterhalb der Barriere im Verhältnis zu den quantenmechanischen Tunnelbeiträgen durch die Barriere um viele Größenordnungen größer sind, sind Letztere in der Auftragung in Abbildung 3.5 nicht mehr auflösbar, was auch in Übereinstimmung mit vorherigen Beobachtungen [15, 53] ist. Die Mittelwerte der schrägen

Elektronen- Φ_e und Lochbarrieren Φ_h lassen sich mithilfe von Gleichung (3.15) und Tabelle 3.1 berechnen.

$$\Phi_e = \frac{\Phi_e^{Ag} + \Phi_e^{Al}}{2} = 3.15 eV \quad \& \quad \Phi_h = \frac{\Phi_h^{Ag} + \Phi_h^{Al}}{2} = 3.55 eV \quad (3.15)$$

In Übereinstimmung mit den Ergebnissen zu j_z haben die Löcher im Mittel eine leicht höhere Barriere $\Phi_h > \Phi_e$, sodass Elektronen bei gleicher Anregungsenergie mit größerer Wahrscheinlichkeit transmittiert werden. Dieses Ergebnis wird auch in Abbildung 3.5 bestätigt, da der Beitrag der Elektronen größer als der Beitrag der Löcher ist.

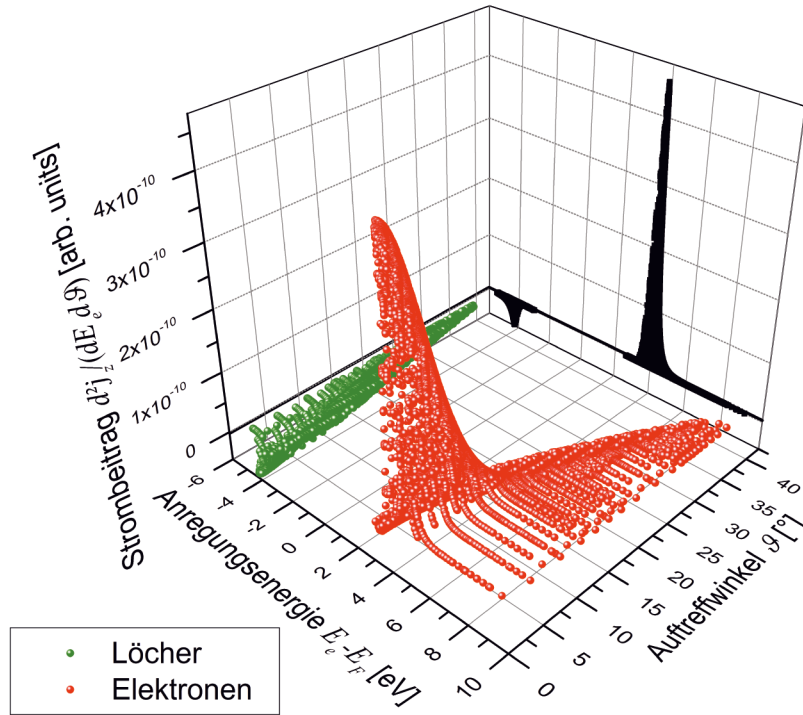


Abbildung 3.5: Elektron- (rot) und Lochstrombeiträge (grün) in einem $Ag|AlO_x|Al$ -MIM-System bei $U_{Bias} = 0 V$. In der schwarzen Projektion in der x - z -Ebene sind alle winkelabhängigen Strombeiträge aufsummiert.

Bei der weiteren Betrachtung ist zu erkennen, dass es ebenfalls eine ϑ -Abhängigkeit der angeregten Löcher und Elektronen gibt, welche durch den Grenzwinkel der externen Emission [12] verstanden werden kann:

$$\vartheta_{Grenz} = \arccos \left(\sqrt{\frac{E_{SB}}{E_e}} \right) \quad (3.16)$$

In dieser Gleichung stehen E_e für die Gesamtenergie der Elektronen und $E_{SB} = \Phi_e^{Ag} + E_F^{Ag}$ für das Oberflächenbarrierenpotential, wobei der jeweilige Energienullpunkt die Unterkante des Silber-Leitungsbandes ist. Für die Löcher wird $E_{SB} = \Phi_h^{Al}$ gesetzt und $E_e - E_F^{Ag}$ für die Lochenergie relativ zum Fermi-Niveau in Silber. Trägt man die winkelabhängigen Da-

ten aus Abbildung 3.5 in der $(E_e - E_F) - \vartheta$ Ebene unter Vernachlässigung ihrer Stromdichte auf, so ergibt sich in Abbildung 3.6 eine Draufsicht von Abbildung 3.5. Analog zu Abbildung 3.5 sind hier die Lochbeiträge zum Tunnelstrom in Grün und die Elektronenbeiträge in Rot eingezeichnet. Dazu sind in Schwarz und Orange die auf Gleichung (3.16) basierenden klassischen Grenzwinkel ϑ_{Grenz} zu sehen. Grundsätzlich können diese Kurven so interpretiert werden, dass im Fall der Elektronen alle roten Punkte links der schwarzen Kurve Tunnelstrombeiträge durch die Barriere und alle roten Punkte rechts der schwarzen Kurve Over the Barrier -Strombeiträge sind. Bei den Löchern (grüne Kreuze) und der orangefarbenen Kurve verhält es sich hier genau andersherum.

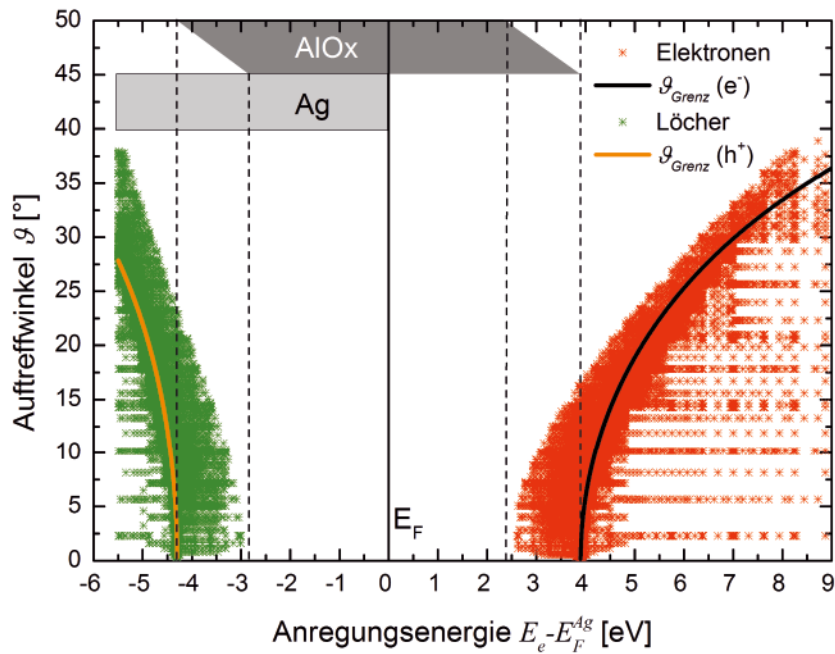


Abbildung 3.6: Winkelabhängigkeit der in Abbildung 3.5 gezeigten Elektronen- (rot) und Lochbeiträge (grün) für $T_e^{Ag} = 3000$ K, $T_e^{Al} = 300$ K und den in Tabelle 3.1 aufgeführten Barrierenparameter. Die durchgezogenen Linien basieren auf Gleichung (3.16) und sind die zu den Barrieren gehörenden klassischen Grenzwinkel der Transmission.

Im Fall dicker Oxidschichten ist somit zu erwarten, dass die Tunnelbeiträge mehr und mehr verschwinden und die Winkelgrenze der Strombeiträge durch die Kurven begrenzt werden. Das scheinbare Paradoxon, dass es auch bei Anregungsenergien $(E_e - E_F)$ jenseits der Barrierenhöhen Tunnelbeiträge gibt, liegt darin begründet, dass für den Transmissionsprozess nur die senkrechte Komponente der Elektronenenergie $E_e \cdot \cos^2 \vartheta$ wichtig ist, und diese bei einem Winkel $\vartheta > 0$ kleiner als die gesamte Elektronenenergie E_e ist.

Durch geschickte Wahl der Biasspannung U_{Bias} ist es möglich, die Fermi-Niveaus in der Aluminium- und der Silberschicht so weit gegeneinander zu verschieben, bis sich die Elektronen- und Löcherbeiträge (schwarze Projektion in Abbildung 3.5) komplett kompensieren. Dieser Wert für U_{Bias} wird im weiteren Verlauf der Arbeit der Umpolungspunkt U_0

genannt. Wird die Biasspannung über diesen Wert hinaus weiter erhöht, übertrumpft der Strombeitrag der Löcher den der Elektronen, sodass der Nettostrom j_z sein Vorzeichen umkehren kann und in Summe mehr Löcher als Elektronen transmittiert werden können. Die Abhängigkeit des Umpolungspunktes U_0 von der Elektronentemperatur in der Silberschicht wird in Abbildung 3.7 dargestellt. Es ist auffallend, dass U_0 nicht konstant ist, sondern von der Elektronentemperatur abzuhängen scheint.

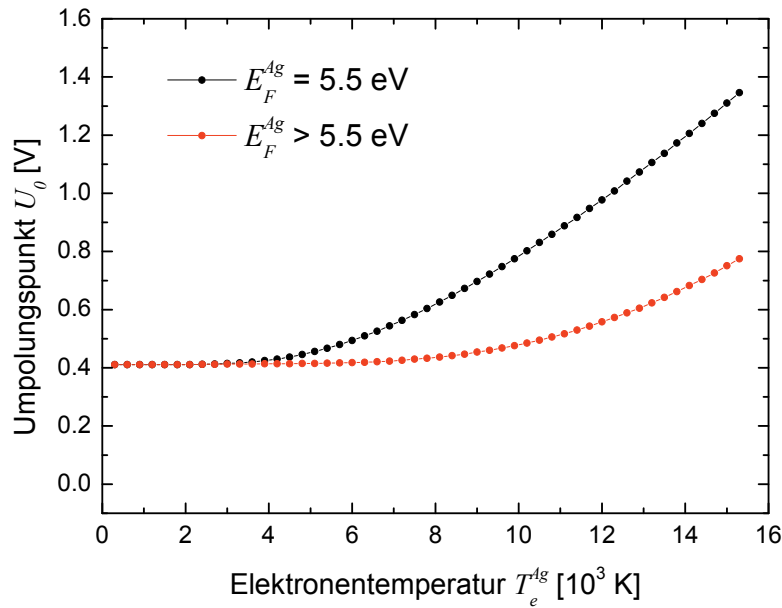


Abbildung 3.7: Umpolungspunkt der Summe aus Elektron- und Lochstrombeiträgen gegen die Silber-Elektronentemperatur. Gezeigt werden der Verlauf für $E_F^{Ag} = 5.5$ eV (schwarz) und für eine künstliche Anhebung der Fermi-Energie von $E_F^{Ag} = E_F^{Al}$ auf 11.6 eV (rot). Diese Rechnungen wurden für $T_e^{Al} = 300$ K und einer trapezförmigen Barriere der Dicke $d_{Ox} = 3.5$ nm durchgeführt.

Bei Werten bis zu $T_e^{Ag} = 4000$ K wird ein konstanter Wert von $U_0 = 0.41$ V für den Umpolungspunkt beobachtet, welches ebenfalls der Differenz aus mittlerer Elektronen- und Lochbarriere (siehe Gleichung (3.15)) entspricht:

$$\Phi_h - \Phi_e = 0.41 eV \quad (3.17)$$

In diesem Temperaturbereich spiegelt der Umpolungspunkt direkt die relative Bandstruktur am Interface wieder. Bei größeren Werten für T_e^{Ag} ist (schwarze Kurve) hingegen wieder ein Anstieg von U_0 zu sehen. Dieser Effekt wird durch die geringe Silber-Fermi-Energie $E_F^{Ag} = 5.5$ eV verursacht. Bei Elektronentemperaturen größer als $T_e^{Ag} = 5000$ K ist die in Abbildung 3.4 abgebildete Fermi-Verteilung der Anregungsverteilung bereits soweit aufgeweicht, dass sie theoretisch auch Löcher unterhalb des Silber-Leitungsbandes anregen könnte. Da dies in dem hier betrachteten Bändermodell nicht möglich ist, wird der Beitrag der Löcher bei $E_e - E_F^{Ag} = -5.5$ eV abgeschnitten, sodass die Biasspannung $U_{Bias} = U_0$ sukzessive immer weiter erhöht werden muss, um Elektronen und Löcher auszugleichen. Wird

nun die Fermi-Energie mit $E_F^{Ag} = E_F^{Al} = 11.6$ eV künstlich angehoben (roten Kurve), so wird der Anstieg flacher und der Effekt der Löcherdiskriminierung ist nicht so stark ausgeprägt. Im Fall einer dicken Oxidbarriere ($d_{Ox} = 30$ nm) verschiebt sich der Umpolungspunkt bei tiefen Temperaturen ($T_e^{Ag} = 300 - 400$ K) zum sog. Flachband-Modell. Hier liegt der Umpolungspunkt bei der Differenz der Elektronenbarrieren auf beiden Seiten (Silber & Aluminium), während der Löcherstrom keinen nennenswerten Beitrag mehr liefert.

Zusammenfassend kann festgehalten werden, dass es durch die Löcherdiskriminierung im Bändermodell der Anregung möglich ist, bei Kenntnis der Barrierenparameter (Tabelle 3.1) anhand des experimentell gemessenen Umpolungspunkts U_0 des Tunnelstroms die Elektronentemperatur T_e^{Ag} zu bestimmen.

3.4 Einfluss des chemischen Potentials

In der ursprünglichen Form der Fermi-Verteilung $f(E_e)$ enthält diese anstelle der Fermi-Energie E_F das chemische Potential μ , welches die notwendige Energie angibt, ein Elektron dem System hinzuzufügen. Wie bereits von Kovacs et al. [54] demonstriert wurde, ist Äquivalenz von Fermi-Energie E_F und chemischem Potential μ allerdings nur für Temperaturbereiche gültig, in denen die Anregungstemperatur T_e klein gegen die Fermi-Temperatur T_F ist. In diesem Abschnitt soll untersucht werden, inwiefern Näherung $E_F = \mu$ die totalen Ströme j_z und möglicherweise den Umpolungspunkt U_0 beeinflussen.

$$f(E_e) = \left[\exp\left(\frac{E_e - \mu}{k_B T_e}\right) + 1 \right]^{-1} \quad (3.18)$$

Um aus dieser Gleichung einen funktionalen Zusammenhang zum chemischen Potential zu extrahieren, wird hierzu im Allgemeinen der Umweg über die innere Energie U und die Teilchenanzahl N des Elektronengases gewählt.

$$U = \int_0^\infty \rho(E_e) f(E_e) E_e dE_e \quad (3.19)$$

$$N = \int_0^\infty \rho(E_e) f(E_e) dE_e \quad (3.20)$$

Zur Lösung der Integrale wird an dieser Stelle die Sommerfeld-Näherung [55] verwendet, in welcher eine Taylorentwicklung der Fermi-Verteilung $f(E_e)$ bis zur zweiten Ordnung nach E_e um den Punkt $\mu = E_e$ durchgeführt wird. Durch Verknüpfung der resultierenden Gleichungen ist es möglich, das chemische Potential zu isolieren und wie folgt in Abhängigkeit der Elektronentemperatur darzustellen [55]:

$$\mu(T_e) = E_F \left(1 - \frac{\pi^2}{12} \frac{T_e^2}{T_F^2} \right) \quad (3.21)$$

In unserem Ag|AlO_x|Al-MIM-Modellsystem (Tabelle 3.1) weist in der Silberschicht das chemische Potential $\mu = \mu^{Ag}$ für wachsende Elektronentemperatur T_e^{Ag} den in Abbildung 3.8 präsentierten funktionalen Zusammenhang auf.

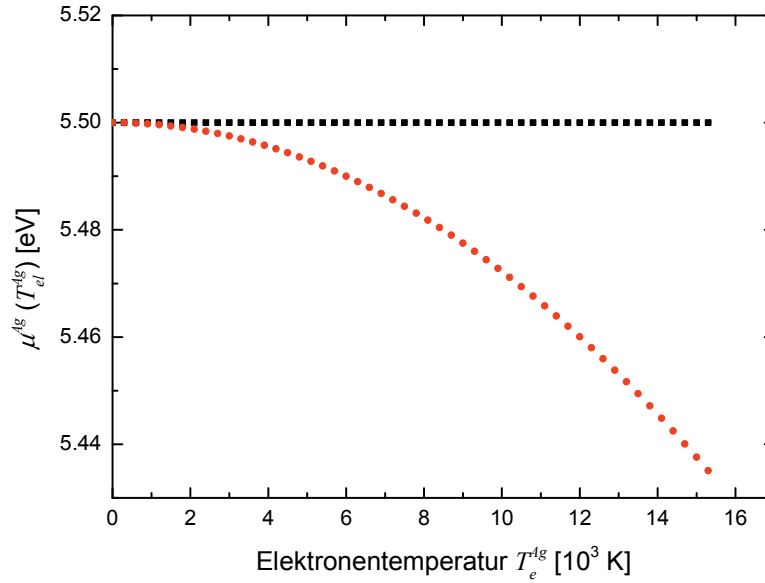


Abbildung 3.8: Temperaturabhängigkeit des chemischen Potentials in Ag.

Um den Einfluss von $\mu(T_e^{Ag})$ auf die Elektronen- und Löcherstrombeiträge (Gleichung (3.13)) untersuchen zu können, müssen zwei Änderungen vorgenommen werden:

- Zum einen muss in der Silber-Fermi-Verteilung (Gleichung (3.7)) E_F^{Ag} durch Gleichung (3.21) ersetzt werden.
- Zum anderen kommt es durch die im Silber lokal erhöhte Elektronentemperatur zu einer Absenkung des chemischen Potentials μ^{Ag} relativ zum Fermi-Niveau E_F , so dass zwischen den beiden Metallschichten lokal eine thermoelektrische Kontaktspannung induziert wird [55]. Wird diese Potentialdifferenz durch die elektrische Kontaktierung der beiden Schichten wieder auf 0 V geregelt, so kommt es zu einer lokalen, elektronentemperaturbedingten Erhöhung der Elektronenbarriere in der Silberschicht, welche durch die Differenz von Fermi-Energie E_F^{Ag} und chemischem Potential μ^{Ag} bestimmt wird. Somit muss die Elektronenbarriere Φ_e^{Ag} in Gleichung (3.1) ersetzt werden durch [53, 54]⁵:

⁵ Diese Verminderung der Barriere wird auch in der externen Emission angewandt, bei welcher dann die innere Barriere durch die Austrittsarbeit ersetzt wird [56, 57].

$$\Phi_e^{Ag} \rightarrow \tilde{\Phi}_e^{Ag}(T_e^{Ag}) = (E_F^{Ag} - \mu(T_e^{Ag})) + \Phi_e^{Ag}$$

Um den Effekt der Temperaturabhängigkeit des chemischen Potentials abzuschätzen, wird in Abbildung 3.9 der biasspannungsabhängige Tunnelstrom j_z (Gleichung (3.13)) exemplarisch für beide Fälle für $U_{Bias} = 0$ V berechnet, wobei die schwarzen Quadrate von einem temperaturabhängigen und die roten Kreise von einem temperaturunabhängigen chemischen Potential ausgehen. Wie eindeutig zu erkennen ist, ist die Temperaturabhängigkeit von $\mu^{Ag}(T_e^{Ag})$ nicht auflösbar und kann somit in unseren Rechnungen vernachlässigt werden.

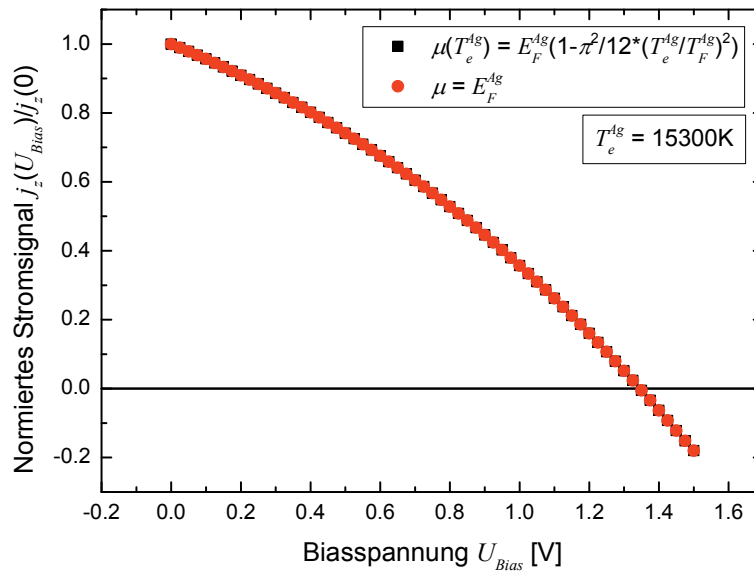


Abbildung 3.9: Einfluss des chemischen Potentials auf die Strombeiträge von Elektronen und Löchern.

3.5 Modell-Vorhersagen in Bezug auf das Experiment

Mithilfe des entwickelten Modells ist es möglich Eigenschaften abzuleiten, welche unser System erfüllen muss, um experimentell messbare Ergebnisse zu liefern. Der folgende Abschnitt ist an Referenz [53] angelehnt.

- Zum einen muss das Messsignal groß genug sein, um es vom Messrauschen eindeutig trennen zu können.
- Zum anderen muss die Biasspannungsabhängigkeit sauber aufgelöst werden, um so eine Identifizierung der Elektronentemperatur aus der Steigung im Nullpunkt zu gewährleisten.

In unseren bisherigen Simulationen sind wir davon ausgegangen, dass die Stromdichte homogen über das Ag|AlO_x-Interface verteilt ist. Im Experiment hingegen gibt es keine homogene Anregung, sondern jeder Projektileinschlag wird als singuläres Ereignis betrachtet infolgedessen heiße Elektronen angeregt werden können. Um den experimentell gemessenen Strom I_{Exp} zu bekommen, muss j_z mit einem Skalierungsfaktor gewichtet werden, in welchem die räumliche und zeitliche Lokalisierung der Anregung berücksichtigt wird. Dieser Skalierungsfaktor setzt sich zusammen aus dem Strom der ankommenden Projektil I_P (in nA), der mittleren Lebensdauer der elektronischen Anregung t_{Casc} und der Fläche A_{Casc} der elektronischen Anregung am Oxid-Interface, welche pro auftreffendem Projektil auf die Elektronentemperatur T_e^{Ag} aufgeheizt wird. Das Produkt aus allen drei Größen liefert (dividiert durch die Elementarladung e) den Skalierungsfaktor, mit welchem die Modellströme am Interface j_z in tatsächliche experimentell messbare Ströme I_{Exp} umgewandelt werden können.

$$I_{Exp} = I_P \cdot \left(\frac{j_z}{e} A_{Casc} t_{Casc} \right) \quad (3.22)$$

Die verwendeten Werte für die drei Größen sind in Tabelle 3.2 aufgeführt.

Größe	Wert	Einheit
I_P	1	nA
A_{Casc}	1	nm ²
t_{Casc}	6.2	fs

Tabelle 3.2: Experimentelle Parameter für Beschussanregung in dünnen Schichten

Bei einem experimentell gemessenen Primärionenstrom von $I_P = 1$ nA ergibt sich somit für den gemessenen Tunnelstrom I_{Exp} ein Skalierungsfaktor von $I_{Exp} \approx j_z \cdot 4 \cdot 10^{-19} \text{ cm}^2$. Die Ergebnisse für die experimentell erwarteten Ströme I_{Exp} werden in Abbildung 3.10 gezeigt, in welcher die Modellstromdichte j_z auf der linken und die experimentell erwarteten Ströme I_{Exp} auf der rechten y-Achse gegen die mittlere Höhe der Elektronenbarriere Φ_e auf der x-Achse aufgetragen sind. Die Barrierenhöhe Φ_h für die Löcher ist (analog zu Gleichung (3.17)) der Einfachheit halber derart gewählt, dass sie immer um 0.41 eV größer als die Elektronenbarriere ist. Die Kurve in Abbildung 3.10 wurde für zwei verschiedene Silber-Elektronentemperaturen $T_e^{Ag} = 3000 \text{ K}$ & $T_e^{Ag} = 12000 \text{ K}$ sowie $U_{Bias} = 0 \text{ V}$ berechnet und zeigt je nach Temperatur unterschiedliches Verhalten.

Bei $T_e^{Ag} = 3000 \text{ K}$ spielen die mittleren Barrierenhöhen Φ_e und Φ_h noch eine bedeutende Rolle (siehe auch Abbildung 3.6), sodass sich das Spektrum der Tunnelstrombeiträge für variable Barrierenhöhen über einige Größenordnungen erstreckt. Bei $T_e^{Ag} = 12000 \text{ K}$ hingegen dominieren die Beiträge über die Barrierenkanten, sodass der Einfluss der absoluten Barrierenhöhe zurückgeht und sich der Strom I_{Exp} nur noch um knapp eine Größenordnung ändert.

In Abbildung 3.10 geben die horizontalen Intervalle die unterschiedlichen Barrierenhöhen in verschiedenen MIM-Systemen an. Die gezeigten Systeme sind die im Rahmen dieser Arbeit verwendeten Ag|AlO_x|Al-MIM-Systeme (Tabelle 3.1) sowie (zum Vergleich) die zu erwarteten Ströme für eine TaO_x-Barriere [58, 59]. Wie auf der rechten Achse erkennen ist, befinden sich die beschussinduzierten Ströme bei einer Primärstromstärke von $I_P = 1$ nA bei größer Anregung (12000 K) im Bereich von $I_{Exp} = 1 - 1000$ pA, während sie bei schwächerer Anregung ($T_e^{Ag} = 3000$ K) dramatisch klein werden können. Der Übergang zu geringeren Barrierenhöhen bringt aber auch einen Nachteil mit sich, welcher im weiteren Verlauf diskutiert werden soll.

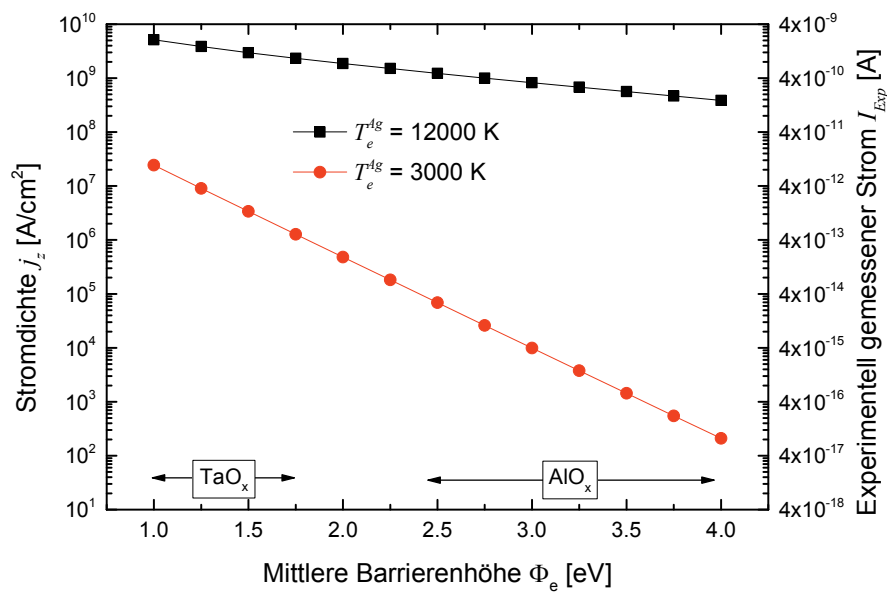


Abbildung 3.10: Berechnete Stromdichten (Gleichung (3.13)) für $T_e^{Ag} = 3000$ K sowie $T_e^{Ag} = 12000$ K mit $T_e^{Al} = 300$ K, $d_{Ox} = 3.5$ nm und $U_{Bias} = 0$ V. Auf der linken x-Achse ist j_z aufgetragen, während auf der rechten x-Achse der im Experiment geschätzte Strom I_{Exp} aufgetragen ist.

Wie eingangs erwähnt ist ein wesentliches Kriterium für eine erfolgreiche MIM-Messung ein gutes Signal/Rausch-Verhältnis. Das Rauschen kann neben externen, messtechnischen Störungen auch durch systeminterne Störungen verursacht werden. Trotz des räumlich und zeitlich stark lokalisierten Charakters der projektilinduzierten elektronischen Anregung führt der kontinuierliche Beschuss des MIM-Systems dazu, dass sich die gesamte Probe über kurz oder lang kontinuierlich aufheizt. Die Aufheizung ist zwar für ein einzelnes Projektil sehr gering, kann aber für einen hohen Strom an auftreffenden Projektilen einen großen Einfluss haben. Wenn angenommen wird, dass sich der MIM-Kontakt im Mittel um $\Delta T_e^{Ag} = 10^{-4}$ K aufheizt, führt dies zu einem thermisch induzierten Strom. In diesem Fall werden beide Elektronentemperaturen als tatsächliche thermodynamische Temperaturen angenommen, da sie für die gesamte Dauer des Ionenstrahls und die gesamte MIM-Kontaktfläche gelten. Um die Auswirkung eines solchen Untergrunds auf die Messung

abzuschätzen muss man bedenken, dass dieser Strom von dem gesamten Bauelement getragen wird, d. h. die zugehörige Stromdichte mit der gesamten Fläche des MIM-Kontakts multipliziert werden muss.

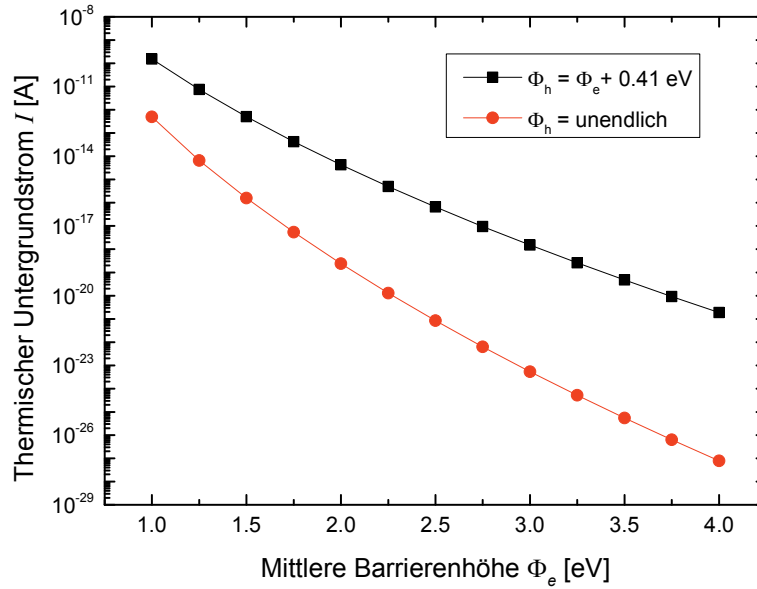


Abbildung 3.11: Strahlinduzierte thermische Untergrundströme in einem MIM-System in Abhängigkeit von der Barrierenhöhe der Elektronen. Die Ströme wurden für $T_e^{Ag} = 300.0001$ K und $T_e^{Al} = 300$ K mit einer Schichtdicke von $d_{Ox} = 3.5$ nm und einer Fläche $A_{MIM} = 1$ cm² berechnet.

Abbildung 3.11 zeigt diesen thermisch induzierten Strom für eine angenommene Fläche von $A_{MIM} = 1$ cm² in Abhängigkeit der mittleren Barrierenhöhe der Elektronen Φ_e im einerseits im 2-Band-Tunnelmodell mit einer Löcherbarriere von $\Phi_h = \Phi_e + 0.41$ eV (MIM-System) und andererseits im 1-Band-Tunnelmodell mit einer unendlich großen Löcherbarriere, um den Einfluss der Löcher auf den thermisch induzierten Strom abzuschätzen. Es fällt auf, dass der Unterschied zwischen beiden Modellen im Fall großer Barrieren bis zu sechs Größenordnungen beträgt, wobei die thermischen Untergrundströme im 2-Band-Modell erwartungsgemäß größer sind, da sowohl Elektronen als auch Löcher dazu beitragen können. Darüber hinaus sind die Fluktuationen nicht rein exponentiell, sondern weisen, je nach Barrierenhöhe, eine steile (kleine Barrieren) oder eine flache (große Barrieren) Steigung auf.

Bei einer Gegenüberstellung von Abbildung 3.10 und Abbildung 3.11 wird deutlich, dass die beschussinduzierten Signale in Abbildung 3.10 mit ansteigender Barrierenhöhe Φ_e deutlich schwächer abfallen, als die Untergrundströme in Abbildung 3.11. Durch eine Erhöhung der Barriere ist es somit möglich, den Einfluss der thermischen Untergrundströme bei verhältnismäßig geringem Signalverlust I_{Exp} deutlich zu verringern. Insbesondere bei Experimenten mit großen Primärionenströmen und so erhöhten thermischen Untergrund-

strömen kann eine Erhöhung der Barriere durch die richtige Wahl eines MIM-Systems das Signal/Rausch-Verhältnis (zulasten des Tunnelsignals) deutlich verbessern.

Hierbei ist festzuhalten, dass die Untergrundströme in Abbildung 3.11 darüber hinaus massiv von der Oxidschichtdicke d_{Ox} , der aktiven Fläche des MIM-Systems A_{MIM} und der angenommenen thermischen Aufheizung des Gesamtsystems abhängen. In dem hier betrachteten Fall liegen die Untergrundströme außerhalb unseres Messbereiches, jedoch können bereits kleine Variationen der Simulationsparameter die Ströme massiv anwachsen lassen.

3.6 BEEM-Transmission

Um die oben beschriebenen numerischen Modellierungen (Kapitel 3.3 bis 3.5) mit unseren experimentellen Daten verknüpfen zu können, müssen die Barrierenparameter des MIM-Systems bekannt sein. Wie bereits von Meyer [7] gezeigt wurde, können jedoch leicht veränderte Barrierenparameter die Ergebnisse der Modellierung massiv beeinflussen.

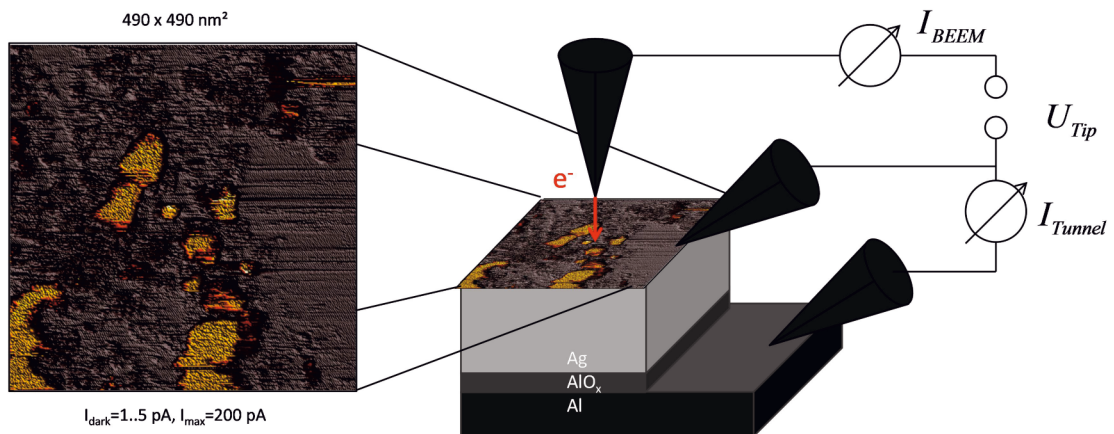


Abbildung 3.12: Skizze der BEEM-Experimente. Zwischen den Spitzen 1 und 2 wird ein Elektronenstrom I_{BEEM} mit einer gewissen Energie eU_{Tip} injiziert und danach ein Tunnelstrom I_{Tunnel} zwischen den Spitzen 2 und 3 gemessen. Die Transmission der Elektronen ist im linken Inlay gemessen, wobei die Farbskala angibt, wie gut Elektronen durch die Barriere emittiert werden [60].

Ein möglicher Ansatz zur Lösung dieses Problems besteht darin, die in Gleichung (3.13) die aus den Barrierenparametern (Tabelle 3.1) berechnete Tunnelwahrscheinlichkeit T_{Ox} durch eine direkt im Experiment gemessene Transmissionswahrscheinlichkeit T_{Exp} zu ersetzen. Eine Möglichkeit, T_{Exp} direkt zu messen, stellt die ballistische Elektronenemissionsmikroskopie (BEEM) zur Verfügung. Bei BEEM-Experimenten [19, 61] werden durch Anlegen einer festen Potentialdifferenz U_{Tip} Elektronen einer festgelegten Energie eU_{Tip} aus einer Tunnelspitze in die dünne Silberschicht einer Dicke von ungefähr 12 nm injiziert, welche die Silberschicht durchlaufen und nach erfolgreichem Tunneln durch das Aluminiumoxid in der Aluminiumschicht als Strom nachgewiesen werden können. Der Aufbau einer solchen Messung wird schematisch in Abbildung 3.12 gezeigt.

Die BEEM-Messungen wurden, im Rahmen der Kooperation innerhalb des Sonderforschungsbereichs 616 in der Arbeitsgruppe von Prof. Möller, an einem speziell präparierten Ag|AlO_x|Al-MIM-System durch A. Bernhart und M. Kaspers durchgeführt. Der Unterschied zu den in dieser Arbeit verwendeten MIM-Systemen bestand darin, dass die Silberschicht nur eine Schichtdicke von $d_{Ag} = 12$ nm aufwies und in kleine, separierte Inseln einer Größe von $1 \times 0.4 \text{ mm}^2$ aufgeteilt war. Diese wurden in einem kommerziellen Four-Probe STM-Aufbau getrennt voneinander kontaktiert, wobei eine Tunnelspitze als Elektronenquelle und eine weitere als Referenzelektrode auf der Silber-Insel fungierte. Die dritte Spitze wurde auf der Aluminiumschicht platziert und diente zur Strommessung der in die Aluminiumschicht transmittierten Elektronen, während die Vierte ohne Funktion blieb. Durch die feste Potentialdifferenz eU_{Tip} wurde ein (je nach Polarität von U_{Tip}) Elektronen- bzw. Löcherstrom mit einer Stromstärke von $I_{BEEM} = 600$ pA sowie einer Anregungsenergie eU_{Tip} in die Silberschicht injiziert und konnte nach erfolgreichem Transport durch die Silberschicht mithilfe der dritten Elektrode als Tunnelstrom I_{Tunnel} gemessen werden.

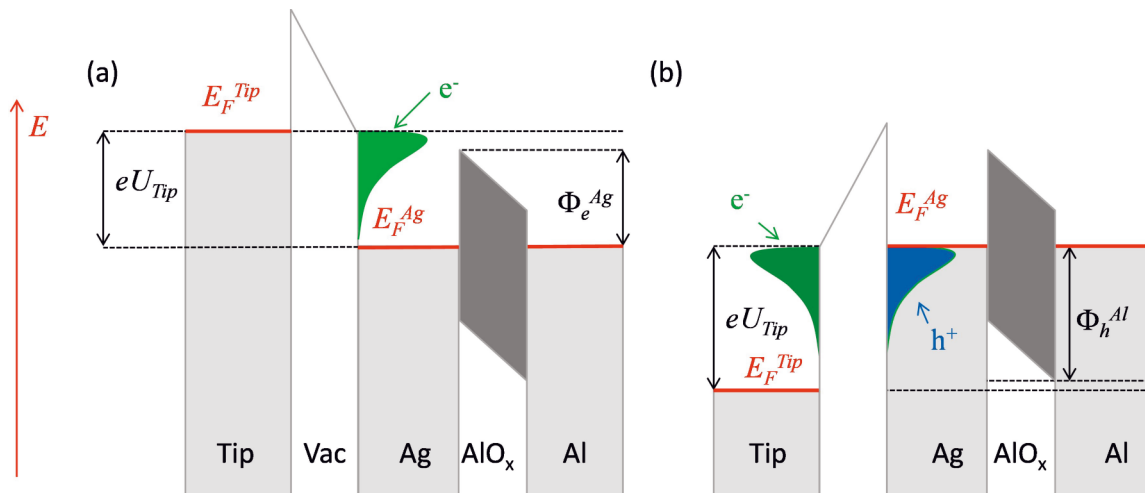


Abbildung 3.13: Schema der Elektronen- und Löcherinjektion in den BEEM-Experimenten. In Fall (a) wird durch Anheben des Fermi-Niveaus der Tunnelspitze um eU_{Tip} eine Elektronenverteilung (grün) in die Silberschicht injiziert, welche dort auf die AlO_x-Barriere treffen. Im rechten Fall (b) wird das Fermi-Niveau E_F^{Tip} um eU_{Tip} abgesenkt, wodurch eine Elektronenverteilung aus der Silberschicht in die Spitze fließt. Die zurückbleibenden Fehlstellen können als eine Löcherverteilung (blau) aufgefasst werden, welche ebenfalls durch die AlO_x-Schicht tunneln kann.

In Abbildung 3.13 ist die Elektronen- und Löcherinjektion schematisch im Bändermodell abgebildet. Von links nach rechts sind hier das bis zum Fermi-Niveau E_F^{Tip} gefüllte Band der Spitze, die VakuumbARRIERE und ein Ag|AlO_x|Al-MIM-Kontakt mit $E_F^{Ag} = E_F^{Al}$ abgebildet. Wenn nun in (a) E_F^{Tip} um eU_{Tip} gegenüber E_F^{Ag} angehoben wird, fließt ein spannungsabhängiger Elektronenstrom durch die VakuumbARRIERE (grün), welcher dann ballistisch weiter auf die AlO_x-Barriere zufließt und diese abhängig von der Barrierenhöhe Φ_e^{Ag} überqueren bzw. durchtunneln kann. Wird in (b) E_F^{Tip} um eU_{Tip} abgesenkt, so fließt der Elektronenstrom in Gegenrichtung. Hier wird durch die nachfließenden Elektronen ein Löcherstrom (blau) in der Silberschicht injiziert, welcher (entgegen dem Elektro-

nenstrom) auf die AlO_x -Barriere zufliegt und diese durch Überwinden der Löcherbarriere Φ_h^{Al} unterschreiten bzw. durchtunneln kann. Bemerkenswert ist hier, dass in Fall (a) die Mehrheit der Elektronen die Anregungsenergie eU_{Tip} besitzt, während in Fall (b) die Minderheit der Löcher im Silberfilm die Energie eU_{Tip} aufweist. Die Transmission der Löcher sollte demnach im hier gezeigten Fall geringer als die Transmission der Elektronen sein, da zum einen die mittlere Barriere für die Löcher größer ist (Gleichung (3.15)) und zum anderen die Mehrheit der mit eU_{Tip} injizierten Löcher tatsächlich eine geringere Energie $E_h < eU_{\text{Tip}}$ besitzen.

Die allgemeine Ausbeute Γ_{BEEM} der durch die AlO_x -Barriere transmittierten Ladungsträger ist definiert als das Verhältnis von detektierten zu injizierten Ladungsträgern.

$$\Gamma_{\text{BEEM}} = \frac{I_{\text{Tunnel}}}{I_{\text{BEEM}}} \quad (3.23)$$

Diese Ausbeute Γ_{BEEM} kann als eine Transmissionswahrscheinlichkeit interpretiert werden, da mithilfe der einstellbaren Spannung U_{Tip} die Barriere energetisch abgetastet und so bei jeder Energie die zugehörige Transmission bestimmt werden kann. Die Biasspannung zwischen der Silber- und der Aluminiumschicht betrug während allen BEEM-Messungen $U_{\text{Bias}} = 0 \text{ V}$, sodass es keine biasspannungsabhängigen Untergrundstrombeiträge gab. In Abbildung 3.14 wird die auf dem WKB-Formalismus basierende numerisch modellierte Transmission T_{Ox} (Gleichung (3.4)) gegen die BEEM-Ausbeute Γ_{BEEM} aufgetragen. Da die BEEM-Daten aufgrund technischer Limitierungen auf einen Energiebereich von 2 - 4 eV beschränkt sind, werden diese Daten mithilfe einer Exponentialfunktion zu Energien jenseits von $\pm 4 \text{ eV}$ extrapoliert. Über den schraffierten Bereich in Abbildung 3.14 können keine präzisen Aussagen getroffen werden, da für diesen Bereich keine Messdaten vorliegen. Werden die BEEM-Daten durch eine Exponentialfunktion (rot gestrichelt) interpoliert, so ergibt sich eine um mehrere Größenordnungen größere Transmission, als ausgehend von der WKB-Transmission zu erwarten wäre. Weiterhin ist in der Ausbeute Γ_{BEEM} der Elektronen zu beobachten, dass diese bei $E_e - E_F = 2 \text{ eV}$ nach unten abknickt und somit ein steilerer Anstieg zu erwarten ist. Dieses „Abknicken“ wird hingegen bei der BEEM-Ausbeute der Löcher nicht beobachtet.

Anhand von Abbildung 3.14 ist erkennbar, dass die BEEM-Ausbeute zwar eine gewisse Korrelation mit der vom Modell prognostizierten Tunnelwahrscheinlichkeit aufweist, die Ausbeute diese aber insbesondere für Energien um das Fermi-Niveau herum um etliche Größenordnungen überschätzt. Gleichzeitig wird die Transmission für höhere Anregungsenergien unterschätzt. Diese Beobachtung hat verschiedene Ursachen.

Die Abweichung der schwarzen Datenpunkte in Abbildung 3.14 kann durch experimentelle Artefakte begründet sein. Bei einem Blick auf den skizzierten BEEM-Aufbau in Abbil-

Abbildung 3.12 ist auch auf der linken Seite eine Aufnahme der BEEM-Transmission zu sehen. Die farbliche Codierung ist ein Maß für den Strom I_{Tunnel} und somit auch ein Maß für die Transmission. Während der größte Teil des untersuchten Bereiches von $490 \times 490 \text{ nm}^2$ die gleiche Transmission zu haben scheint, sind darüber hinaus noch helle Flecken zu erkennen, welche Bereiche besonders hoher Transmission kennzeichnen.

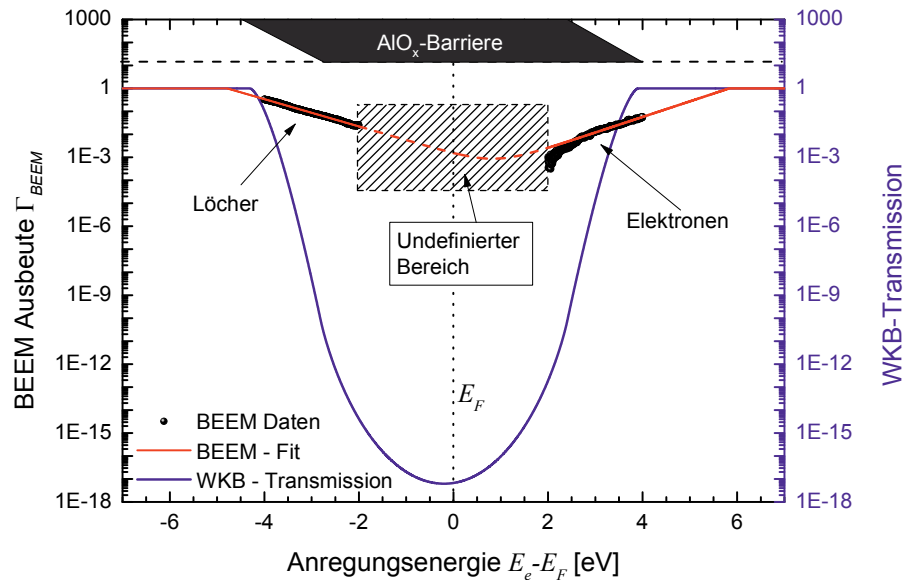


Abbildung 3.14: Vergleich von BEEM-Daten [60] (schwarz) mit der numerisch modellierten Tunnelwahrscheinlichkeit (blau). Aufgetragen sind links die BEEM-Ausbeute und rechts die WKB-Transmission gegen die Anregungsenergie von Elektronen und Löchern. Zum Vergleich ist oben die AlO_x -Barriere ins Energieschema aufgetragen.

Die in Abbildung 3.14 gezeigten Datenpunkte ergeben sich aus der Integration über die jeweilig gemessene Scanfläche und werden somit in ihrem Absolutwert durch diese hellen Flecken verzerrt. Weitere Beobachtungen [60] zeigen, dass diese Flecken erst ab einer gewissen Injektionsenergieschwelle $eU_{Tip} = 1.8 \text{ eV}$ aufleuchten und zudem für höhere Energien „wandern“. Es ist derzeit unklar, ob diese Flecken Löcher/Fehlstellen in der Silberschicht und/oder Beschädigungen im Oxid sind und inwiefern diese reproduzierbar sind. Laut Brytov kann die strukturelle Unordnung in amorphem AlO_x zu Ausläufern von Leitungs- und Valenzband in die Bandlücke führen, sodass sich innerhalb von E_{gap} besetzbare elektronische Zustände finden [62]. Der Effekt niederenergetischer elektronischer Zustände in der Oxidschicht geht jedoch mit wachsender Schichtdicke zurück [63].

Ein weiterer Punkt betrifft die Abweichung der BEEM-Transmission von der WKB-Kurve für hohe Energien. Hier sollte die Transmission im Experiment eigentlich eins sein. Trotzdem wird ein kleinerer Wert beobachtet. Dies kann verschiedene Ursachen haben. Zum einen kann durch den Transport ein Teil der Elektronen von der Oberfläche zum Oxidinterface ganz verloren gehen und nicht mehr transmittiert werden kann, zum anderen können

Elektronen durch inelastische Stoßprozesse Energie einbüßen, wodurch sie dann mit einer geringeren Energie auf das Oxid treffen und so eine geringere Transmissionswahrscheinlichkeit haben. Dieser Effekt der Verbreiterung der Elektronenenergieverteilung könnte so die Transmission künstlich absenken. Entgegen der Erwartungen ist auffällig, dass die Ausbeute der Löcher größer als die der Elektronen ist, was im Vergleich zu den invertierten Energieverteilungen von Elektronen und Löcher in Abbildung 3.13 überraschend ist. Dies lässt darauf schließen, dass die Form der Barriere scheinbar doch von der in dieser Arbeit angenommenen Form abweicht.

In Abbildung 3.15 sind die bereits in Abbildung 3.14 gezeigten BEEM-Daten vergrößert dargestellt. Zur Bestimmung der Barrierenparameter gibt es nun verschiedene Optionen.

- (a) In der BEEM-Community ist die Bell-Kaiser Formel (Gleichung (3.24))[64] weit verbreitet:

$$\Gamma_{BEEM} \propto \frac{(eU_{Tip} - \Phi_e)^2}{eU_{Tip}} \quad (3.24)$$

Da diese jedoch nur die Transmission oberhalb der Tunnelbarriere beschreibt und die hier präsentierten Daten fast alle unterhalb der erwarteten Barrierenhöhe Φ_e liegen, wurde diese Herangehensweise im hier gezeigten Fall verworfen.

- (b) Stattdessen wurde die klassische Tunnelwahrscheinlichkeit T_{Ox} durch einen Potentialwall herangezogen. In einer vereinfachten Annahme, dass sich die AlO_x -Barriere als Kastenpotential mit einer mittleren Dicke d_{Ox} und einer mittleren Höhe Φ_e beschreiben lässt, sollte sich die als Tunnelwahrscheinlichkeit interpretierte BEEM-Ausbeute durch Gleichung (3.25) beschreiben lassen, in welcher $E_e = E_F^{Ag} + eU_{Tip}$ die Gesamtenergie der angeregten Elektronen und $E_{SB} = E_F^{Ag} + \Phi_e$ die Gesamthöhe der Elektronenbarriere darstellt.

$$T_{Ox}(E_e) = \frac{16E_e}{E_{SB}^2} (E_{SB} - E_e) \cdot \exp\left(-2d_{Ox}\sqrt{2m(E_{SB} - E_e)}\right) \quad (3.25)$$

Für die Transmission der Löcher wurde die Formel modifiziert, sodass $E_e = eU_{Tip}$ die Energie der Löcher und $E_{SB} = \Phi_h$ die mittlere Löcherbarriere repräsentieren. Der Einfachheit halber wurde angenommen, dass die Elektronenmasse gleich der Löchermasse ist.

Wie in Abbildung 3.15 zu erkennen, kann die Ausbeute der Elektronen in drei Bereiche aufgeteilt werden. In den Farben Orange, Magenta und Blau sind die Anpassungen der Elektronenausbeuten an den Tunnelformalismus in Gleichung (3.25) hervorgehoben, während die Anpassung der Löcherdaten in roter Farbe gekenn-

zeichnet ist. In Tabelle 3.3 sind die für die Anpassungen nötigen Parameter d_{Ox} und Φ_e aufgeführt.

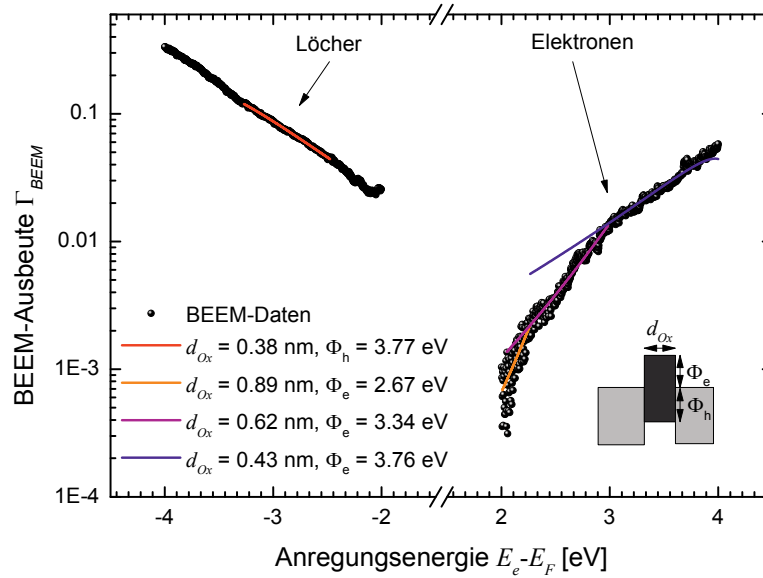


Abbildung 3.15: Bestimmung der Barrierenform aus den BEEM-Daten [60]. Die Transmission der Löcher zeigt einen rein exponentiellen Verlauf, während die Elektronen drei unterschiedliche Bereiche aufweisen. Die Datenpunkte können darüber hinaus mithilfe von Gleichung (3.25) beschrieben werden, wobei die Anpassung der Löcher in Rot und die Anpassungen der Elektronen in Orange, Violett und Blau gezeigt werden.

Farbe	Ladungsträger	Energiebereich [eV]	Schichtdicke [nm]	Barrierenhöhe [eV]
Rot	h^+	(-4, -2)	0.38	3.77
Orange	e^-	(2, 2.2)	0.89	2.67
Violett	e^-	(2.2, 3)	0.62	3.34
Blau	e^-	(3, 4)	0.43	3.76

Tabelle 3.3: Anpassparameter der BEEM-Daten

Wie zu erkennen, stimmt der Wert für die mittlere Lochbarriere mit dem bereits in Gleichung (3.15) berechneten Wert mit 6 % Abweichung überein. Die Dicke, welche bei 3 nm liegen sollte, ist jedoch mit einem Wert von 0.38 nm ungewöhnlich dünn. Darüber hinaus scheint die Höhe der Barriere tatsächlich innerhalb des untersuchten Bereiches konstant zu bleiben. Bei den Elektronen ist zu erkennen, dass die Barriere mit zunehmender Höhe immer schmaler wird, was mit dem von uns erwartetem Bild einer trapezförmigen Barriere übereinstimmt. Auch hier bewegen sich die mittleren Barrierenhöhen zwischen 2.67 eV und 3.76 eV, was mit einer Abweichung von 4 % bzw. 8 % den theoretischen angenommenen Barrierenhöhen Φ_e^{Al} und Φ_e^{Ag} in Tabelle 3.1 entspricht. Die ermittelten Oxidschichtdicken mit Werten von 0.43 nm bzw. 0.89 nm sind allerdings wieder unerwartet dünn. Die Abweichungen zu den erwarteten Oxidschichtdicken von $d_{Ox} = 3$ nm sind viel-

fältig und bestehen vermutlich aus den Verzerrungen der Ausbeuten durch die Bereiche überhöhter Transmission, nicht berücksichtigte Streuprozesse der Elektronen sowie den in Abbildung 3.13 gezeigten energieabhängigen Anregungsverteilungen von Elektronen und Löchern. Es könnte jedoch auch ein Hinweis darauf sein, dass die Barriere eine andere Form hat, als in Abbildung 3.4 angenommen wird [65].

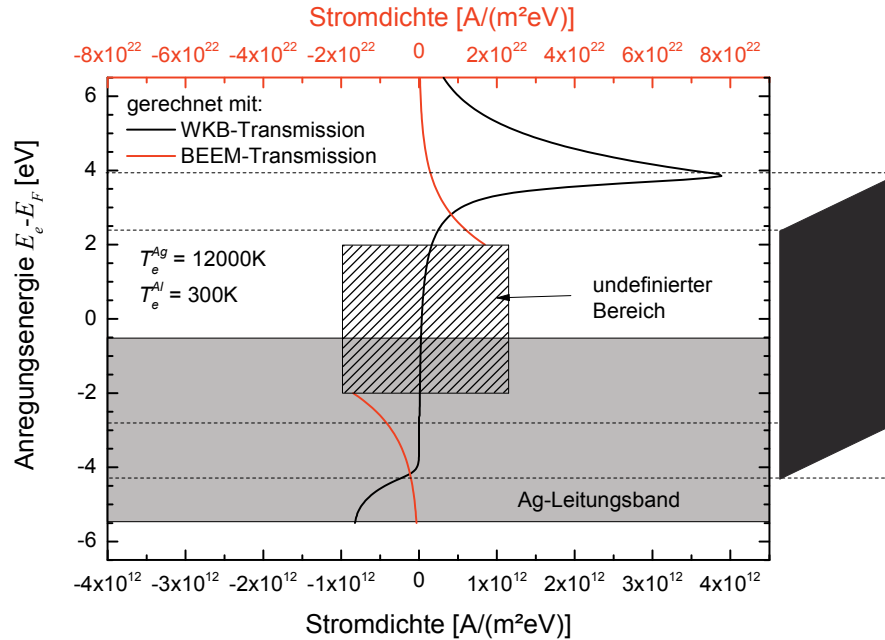


Abbildung 3.16: Berechnete Stromdichten für verschiedene Transmissionsmodelle (siehe Abbildung 3.14). In schwarz (untere Achse) ist die Stromdichte für das bisher verwendete WKB-Modell, in rot (obere Achse) für die interpolierte BEEM-Transmission aufgetragen. Zum Vergleich ist zudem rechts im Bild die Barrierenform zu sehen. Die Barrierenparameter, welche in das WKB-Modell eingehen, sind Tabelle 3.1 entnommen.

Basierend auf den BEEM-Daten ist es möglich, mithilfe von Gleichung (3.13) die Anteile von Elektron- und Lochstromdichten zu berechnen. Diese werden für eine exemplarisch gewählte Elektronentemperatur von $T_e^{Ag} = 12000$ K in Abbildung 3.16 gezeigt. In schwarz (untere Achse) ist hier die Stromdichte aufgetragen, welche mithilfe der WKB-Transmission in Gleichung (3.4) berechnet wurde. Wie zu erkennen ist, überwiegen in diesem Fall bei $T_e^{Ag} = 12000$ K die „Over-the-Barrier“-Beiträge, während die Beiträge um das Fermi-Niveau verschwindend gering ausfallen. Ein völlig anderes Bild zeigt sich für die in rot (obere Achse) aus der BEEM-Transmission berechnete Stromdichte, bei welcher kein „Over-the-Barrier“-Verhalten auszumachen ist. Stattdessen scheinen die Beiträge am Fermi-Niveau zu überwiegen. Dies liegt an dem optimistischen Exponentialfit in Abbildung 3.14, bei welchem die Transmission um das Fermi-Niveau stark überschätzt wird. Da die Kurven im Bereich $[-2 \text{ eV}, +2 \text{ eV}]$ nicht auf Messdaten beruhen, wurden sie an dieser Stelle ausgespart, da über den Verlauf der BEEM-Daten in diesem Bereich keine gesicherten Aussagen möglich sind. Beim Blick auf die absoluten Werte fällt zudem auf, dass die Stromdichten für die BEEM-Transmission um mehrere Größenordnungen größer sind

als die WKB-Daten, was ebenfalls auf die erhöhte Transmissionswahrscheinlichkeit zurückgeführt werden kann.

Zusammenfassend ist festzuhalten, dass sich der hier gemachte grobe Ansatz, die BEEM-Daten mit einer Exponentialfunktion zu interpolieren, nicht dazu eignet, die auf den Barrierenparametern basierende WKB-Transmission zu ersetzen. Darüber hinaus wären nur Simulationen bei einer konstanten Biasspannung von $U_{Bias} = 0$ V möglich, da die Transmission durch die Barriere ebenfalls von der angelegten Biasspannung abhängt und für eine veränderte Biasspannung keine BEEM-Daten vorliegen.

In einem anderen Ansatz wird die geometrische Form und die energetischen Abmessungen der Tunnelbarriere in den Modellierungen solange Stück für Stück zu verändern, bis sich eine Übereinstimmung der WKB-Kurve in Abbildung 3.14 mit den BEEM-Messungen ergibt. Hierzu werden zurzeit an dieser Universität von Dr. Detlef Diesing in Kooperation mit der Arbeitsgruppe von Prof. Möller numerische Simulationen durchgeführt, deren Ergebnisse im Detail in der Dissertation von Alexander Bernhart vorgestellt werden [65].

3.7 Fazit

In diesem Kapitel der Arbeit wurde das Zwei-Temperatur Modell von Meyer weiterentwickelt und verifiziert, dass die größten Strombeiträge oberhalb bzw. unterhalb der Barrierengrenzen für senkrechtres Auftreffen der Ladungsträger auftreten.

Ein zentrales Ergebnis dieses Abschnittes besteht in der Korrelation zwischen dem biasspannungsabhängigen Umpolungspunkt der Elektronenausbeute und der Elektronentemperatur am Interface. Für geringe Elektronentemperaturen entspricht der zugehörige Wert der Biasspannung der Differenz aus effektiver Elektronen- und Lochbarriere, sodass bei geringer Anregung die relative Höhe der inneren Barrieren zueinander im Experiment gemessen werden kann. Bei hohen (lokalen) Elektronentemperaturen hingegen steigt der Umpolungspunkt der Biasspannung nahezu linear mit der Elektronentemperatur an. Der Anstieg wird durch die begrenzte Breite des Valenzbandes verursacht, durch welchen der Löcherstrom mit zunehmender Elektronentemperatur mehr und mehr diskriminiert wird. Die Steigung im linearen Zusammenhang wird hierbei durch den Wert der Fermi-Energie festgelegt. Der experimentell gemessene Biasspannungswert beim Umpolungspunkt kann daher als ein Indikator für die am Ag|AlO_x-Interface herrschende Elektronentemperatur aufgefasst werden kann. Dieses Resultat ist in Übereinstimmung mit Messungen von Peters [54], bei welchem im Grenzfall sehr hoher Elektronentemperaturen > 100000 K im Messbereich kein Umpolen mehr beobachtet wird.

Da das verwendete Zwei-Temperatur Modell stark von den eingesetzten Barrierenparametern abhängt, wurde die als zentrale Größe ins Modell eingehende WKB-Transmissionswahrscheinlichkeit durch eine empirische experimentell im BEEM gemessene Transmission ersetzt. Hierbei ergab sich, dass es anhand der BEEM-Daten möglich ist, die effektiv im Experiment existierenden Barrierenparameter zu approximieren, wenn die Barrieren als klassische Potentialstufen für Elektronen und Löcher angenommen werden. Innerhalb dieser Näherung ist es jedoch nicht möglich, die WKB-Transmission in den Rechnungen durch die BEEM-Transmission zu ersetzen, da zum einen aufgrund technischer Limitierungen die Transmission nicht für alle Energien gemessen werden konnte und zum anderen die Transmission im Vergleich zu unserem Modell im Allgemeinen ungewöhnlich hoch zu sein scheint. Dies kann als Hinweis interpretiert werden, dass die endgültige Form der Barriere eventuell doch anders aussieht, als in dieser Arbeit angenommen wurde. Dieser Ansatz ist Gegenstand der Dissertation von A. Bernhart und wird dort genauer beleuchtet [65].

4 Versuchsaufbau

4.1	Allgemeines.....	45
4.2	Vakuumsystem.....	46
4.3	Atomika Ionenquelle.....	47
4.4	Elektronenstrahl Verdampfer.....	49
4.5	Probenhalter	51

4.1 Allgemeines

Der experimentelle Aufbau besteht aus drei evakuierten Edelstahlkammern, welche durch Plattenventile voneinander getrennt werden können (siehe Abbildung 4.1). Die drei Kammern werden im Folgenden als (a) Transferkammer, (b) Präparationskammer und (c) Analyse-
kammer bezeichnet.

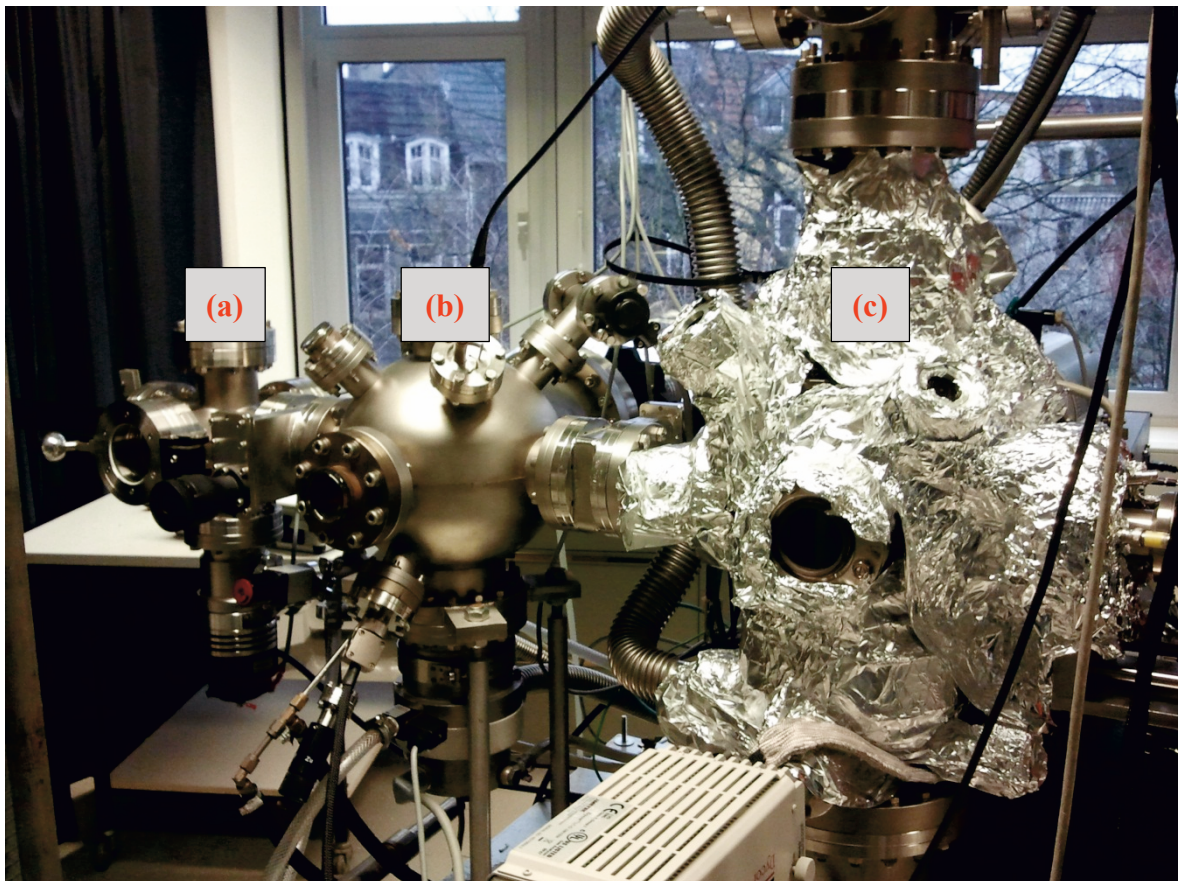


Abbildung 4.1: Experimenteller Aufbau bestehend aus (a) Transferkammer, (b) Präparationskammer und (c) Analyse-
kammer.

Die Transferkammer fungiert als Probenschleuse. An dieser Kammer ist ein magnetgela-
gerter Transferstab montiert, mit welchem es möglich ist, Proben in der Präparations- und

Analysekammer unter Vakuumbedingungen auszutauschen, ohne beide Kammern dafür belüften zu müssen. Das Ein- bzw. Ausschleusen neuer Proben geschieht hier über eine vitongedichtete Schwenktür.

An der Transferkammer ist die Präparationskammer angeflanscht. In dieser ist es mithilfe eines wassergekühlten Elektronenstrahlverdampfers (Kapitel 4.4) möglich, durch einen (auf einem Manipulator befestigten) Probenträger dünne Silberschichten unter Vakuumbedingungen aufzubringen, deren Dicke mit einer Quarz-Microbalance-Waage überwacht werden kann. Zur Verbesserung der Qualität der aufgedampften Filme kann der Probenhalter zusätzlich mit flüssigem Stickstoff gekühlt werden. Nähere Informationen über die Güte der solcherart hergestellten polykristallinen Schichten sind in Kapitel 5.2 zu finden.

Rechts neben der Präparationskammer befindet sich die Analysekammer, in welcher die Experimente zur externen (Kapitel 5 + 6) und inneren Elektronenemission (siehe Kapitel 7 & 8) durchgeführt wurden. An dieser Kammer sind eine Atomika WF-421 Microfocus Ionenkanone (Kapitel 4.3), ein Manipulator samt Probenhalter (Kapitel 4.5) sowie ein Flugzeitmassenspektrometer verbaut, wobei Letzteres bei den hier durchgeführten Experimenten nicht verwendet wurde. Die Ionenkanone dient als Quelle für Argon-Ionen und beschleunigt diese auf den am Manipulator befestigten Probenhalter, auf welchem die zu untersuchenden Proben montiert sind. Näheres zu den Messprozeduren ist in den Kapiteln 5.4 & 7.3 zu finden.

4.2 Vakuumsystem

Um eine hohe Bedeckungszeit sowie eine hohe mittlere freie Weglänge zu realisieren, wurden alle Experimente im Ultrahochvakuum (UHV) durchgeführt. Hierfür wurden die einzelnen Kammern jeweils aus einer vom restlichen System abtrennbaren Reihenschaltung aus je einer Drehschieberpumpe sowie einer Turbomolekularpumpe evakuiert. Zur Geräusch- und Schwingungsdämmung war es weiterhin möglich, die drei Drehschieberpumpen abzuschalten und den Vorvakuumdruck über den Anschluss an ein zentrales Vorvakuumssystem zu erzeugen.

Kammer	Enddruck
Transfer	$2.6 \cdot 10^{-7}$ mbar
Präparation	$2,0 \cdot 10^{-9}$ mbar
Analyse	$3.0 \cdot 10^{-9}$ mbar

Tabelle 4.1: Typische Drücke der am Experiment beteiligten Kammern

Die Enddrücke der Kammern in Tabelle 4.1 sind als das Gleichgewicht zwischen dem (effektiven) Saugvermögen der angeschlossenen Pumpen und der Leckrate in der Kammer definiert. Hierzu zählen tatsächliche Lecks in der Außenwand der Apparatur, Luftein-

schlüsse in verbauten Komponenten (sog. *virtuelle* Lecks) sowie Verunreinigungen innerhalb der Kammer. Mit einem an der Analysekommer befestigten Quadrupol-Massenspektrometer (Ametek Dycor LC-D DM100M) ist es zudem möglich Restgasspektren der Kammer aufzunehmen, um Informationen über die im Restgas verbliebenen Elemente zu bekommen (siehe Abbildung 4.2).

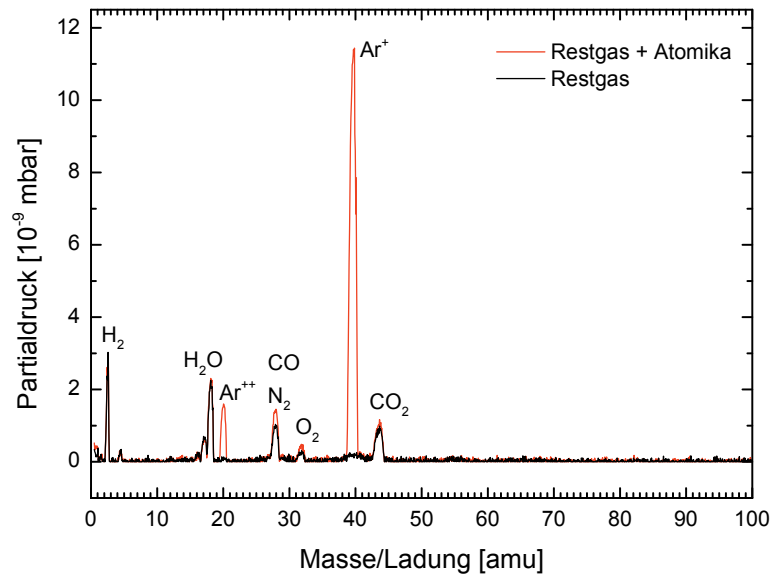


Abbildung 4.2: Restgasspektrum der Analysekommer mit (rot) oder ohne (schwarz) aktivierter Atomika Ionenkanone

In Abbildung 4.2 ist ein typisches Restgasspektrum der Analysekommer zu sehen. Es wird von H_2 und H_2O dominiert, zudem gibt es Peaks von N_2 und O_2 . Dies liegt daran, dass die Apparatur mit Turbopumpen evakuiert wird und nur die Hauptkommer (und nicht die angeschlossenen Bauteile) ausgeheizt wurde.

4.3 Atomika Ionenquelle

Die Atomika Ionenquelle [66-68] wurde für alle in dieser Arbeit durchgeführten Experimente verwendet. In dieser Quelle ist es möglich, Ionen aus allen verfügbaren Edelgasen (He, Ne, Ar, Kr, Xe) sowie aus reaktiven Gasen wie O_2 mit $E_{kin} = 1-15$ keV zu erzeugen und diese zu einem Ionenstrahl zu bündeln. Hierzu wird die gewünschte Gassorte über ein elektronisch regelbares Dosierventil in eine separate Plasmakammer der Kanone eingelassen und (bei konstantem Gasdruck) über eine Kaltkathodenanordnung eine selbstständige, magnetfeldunterstützte Gleichstromentladung gezündet. Die Betriebsparameter, welche zu einem stabilen Betrieb des Argon-Plasmas notwendig waren, sind nachfolgend in Tabelle 4.2 aufgeführt. I_{Magnet} legt die Feldstärke des das Plasma axial durchsetzenden Magnetfelds

fest, während $I_{Discharge}$ und $U_{Discharge}$ den Strom und die Spannung der Entladung bei einem Argon-Partialdruck p_{Ar} in der ersten Pumpstufe bezeichnen. Die Entladung wurde hierbei über den Entladungsstrom $I_{Discharge}$ geregelt, welcher auf den konstanten Wert von 3 mA eingestellt wurde. Abhängig vom Argon-Partialdruck stellte sich $U_{Discharge}$ ein, an dessen Wert die Güte der Entladung abgelesen werden kann.

Größe	Wert	Einheit
I_{Magnet}	2.5	A
$I_{Discharge}$	3	mA
$U_{Discharge}$	416	V
p_{Ar}	$4.7 \cdot 10^{-6}$	mbar

Tabelle 4.2: Betriebsparameter der Plasmaentladung in der Atomika Ionenkanone

Die hierbei entstehenden Ionen werden mithilfe einer Extraktionsspannung abgesaugt, danach auf die gewünschte Energie beschleunigt und durch einen Wienfilter massensepariert. Die monoenergetischen Ionen werden mithilfe zweier Ablenkplattenpaare auf die gewünschte Position auf der Probe gelenkt und dabei optional mit einer Objektivlinse kollimiert. Zusätzlich besitzt die Quelle eine Rastereinheit, mit welcher es möglich ist, den Strahl in einstellbaren Mustern über die Probe rastern zu lassen.

Die Ionenquelle ermöglicht den Einsatz von den in Tabelle 4.3 aufgeführten Blenden. Diese sind hinter den Wienfilter geschaltet und dienen dazu, einerseits den Ionenstrom zu begrenzen und andererseits den Strahldurchmesser zu verkleinern:

Stufe:	1	2	3	4	5	6	7	8	9	10	11	12
Ø [µm]:	-	600	400	300	300	200	100	50	20	20	10	10
Strom [nA]:	733	676	264	139	125	68	30	5.6	1.1	1.0	0.23	0.23

Tabelle 4.3: Blendendurchmesser der Atomika-Ionenquelle. Der Strom ist der gemessene Faraday Cup - Strom (siehe Abschnitt 4.5) für 10-keV Ar^+ - Projektile mit $U_{obj} = 6.04$ kV.

Die für den Betrieb verwendeten Einstellungen sind in folgender Tabelle 4.4 zusammengefasst. U_{acc} repräsentiert die Beschleunigungsenergie der Ionen, welche in kinetische Energie umgewandelt wird. U_{extr} ist die Extraktionsspannung, mit welcher die Ionen aus der Gasentladung abgesaugt werden und U_{obj} ist die Spannung der wahlweise zuschaltbaren Objektivlinse zur Verbesserung des Strahlfokus. Während der Experimente war die Objektivlinse eingeschaltet. Die Werte X und Y stehen für die Strahlausrichtung (X) und den Wienfilter (Y). Mit Letzterem ist es möglich, durch die Kreuzung eines durch die Spannung $U_{Wien} = Y \cdot 100$ V erzeugten \vec{E} -Feld mit einem permanenten \vec{B} -Feld eine gewünschte Ionenspezies aus den in der Gasentladung erzeugten Beschussprojektilen auszuwählen. Die verwendeten Ionen waren fast immer einfach positiv geladene Argon-Ionen, weiterhin wurde die Quelle zu Vergleichsmessungen in Einzelfällen mit Xenon und Krypton betrieben.

U_{acc} [kV]	U_{extr} [V]	U_{obj} [kV]	X	Y	N_X	N_Y	I [nA]
2	96	1.21	0	3.04	0	0.64	0.68
3	138	1.81	0	3.67	0	0.98	4.2
4	186	2.42	0	4.04	0	1.06	15
5	246	3.02	0	4.41	0	1.25	26
6	306	3.63	0	4.74	0	1.44	35.4
7	377	4.23	0	5.06	0	1.68	37.7
8	464	4.84	0	5.41	0	1.88	41.5
9	486	5.44	0	5.53	0	1.98	46.8
10	548	6.04	0	5.76	0	2.17	52
11	613	6.65	0	5.99	0	2.34	59.3
12	678	7.26	0	6.18	0	2.53	68.2
13	743	7.87	0	6.37	0	2.69	76.7
14	810	8.47	0	6.57	0	2.82	54.7

Tabelle 4.4: Experimentelle Parameter der Atomika Ionenquelle (Blende 7)

Die letzten beiden Parameter N_X und N_Y ermöglichen die Strahlablenkung mittels der beiden Ablenkplattenpaare in x- und in y-Richtung. Während in x-Richtung keine Ablenkung notwendig ist, muss in y-Richtung immer eine von der Projektilenergie abhängige Spannung anliegen, da die Atomika-Ionenquelle einen sog. Beam Bend von ca. 1.5° in der Strahlführung aufweist, um Neutralteilchen aus dem Primärionenstrahl herauszufiltern. Die Spannung N_Y sorgt dafür, dass die gewünschte Ionenspezies diesen Knick passieren kann.

Für gepulste Experimente (siehe Kapitel 7.2) wurde die zum Durchflug nötige Wienfilterspannung mittels eines schnellen HV-Schalters (Behlke Push-Pull) gepulst.

4.4 Elektronenstrahl Verdampfer

In der Präparationskammer ist es möglich, mithilfe eines Elektronenstrahlverdampfers dünne (Metall-)Schichten herzustellen. In dieser Arbeit wurden Silberschichten im nm-Bereich zur Messung der externen Elektronenemission hergestellt. Eine Skizze des hierfür benutzten Aufbaus ist in Abbildung 4.3 zu sehen.

Die ganze Verdampfereinheit wird von einem doppelwandigen, von Kühlwasser durchflossenen Kupferzylinder umschlossen, welcher Heizfilament und einen Probenziegel beinhaltet. Der Zylinder besitzt eine kleine kreisförmige Austrittsöffnung, welche mithilfe eines beweglichen Shutters mechanisch durch eine Drehdurchführung geöffnet und geschlossen werden kann. Über dem Verdampfer ist in einem Arbeitsabstand von $d_2 = 5$ cm eine Blende montiert, welche als Schablone für die aufzubringende Silberschicht fungiert.

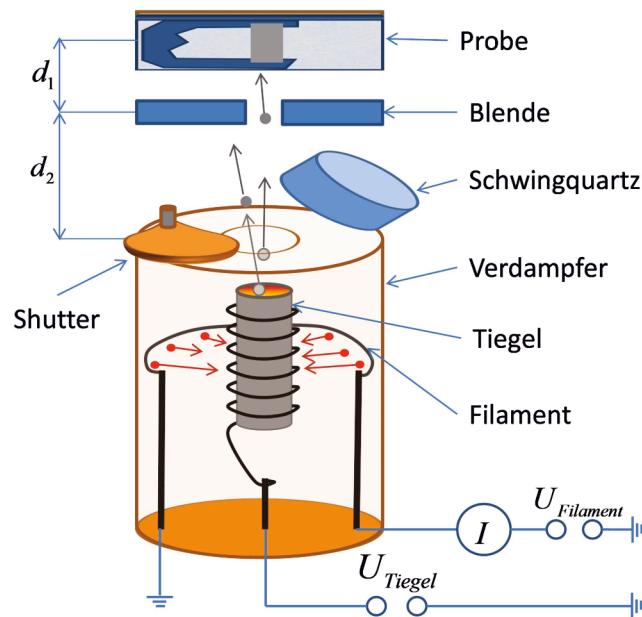


Abbildung 4.3: Schemazeichnung des Elektronenstrahlverdampfers. Ein mit Silber gefüllter Tiegel wird an eine Hochspannung gelegt und durch Elektronenstoß geheizt, wobei die Elektronen durch Glühemission aus einem Filament emittiert werden. Der Strom verdampfter Silberatome wird mithilfe einer Blende in die gewünschte Probengeometrie gebracht und kann bei Bedarf von einem Shutter verschlossen werden. Zusätzlich liefert ein Schwingquarz Information über Aufdampfrate und Schichtdicke des Silberfilms.

Direkt über der Blende ($d_1 = 1 \text{ mm}$) sitzt der Probenhalter, welcher durch einen Manipulator entlang der x- und z-Achse bewegt werden kann. Zusätzlich sitzt zwischen Blende und Verdampfer ein Schwingquarz zur Schichtdickenbestimmung. Dieser wird bei dem Verdampfungsprozess ebenfalls bedampft und ändert durch die auf dem Quarz zunehmende Massenbelegung seine Schwingfrequenz, sodass Aussagen über die Schichtdicke auf der Probe getroffen werden können. Je nach Verdampfungsgeometrie sind die resultierenden Schichtdicken auf Probe und Schwingquarz verschieden, sodass diese in der Ausleseinheit durch einen sog. Toolingfaktor kalibriert werden müssen. Dieser kann durch AFM-Messungen bestimmt werden und liegt typischerweise im Bereich von 6-7.

Der eigentliche Verdampfer selbst besteht aus einem heizbaren Tantaltiegel, welcher mit Molybdändraht umwickelt auf einer isoliert verbauten Schraube fixiert wird. Dieser wird mit kleinen Stücken eines Silberdrahts (99,99 %) von 1 mm Durchmesser gefüllt und bei Betrieb auf eine Spannung U_{Tiegel} gelegt. Um den Tiegel herum ist ein Wolframdraht in einer Schlaufe gespannt, welcher von einem Strom I_{Tiegel} durchflossen wird. Durch den Stromfluss wird der Draht erhitzt und emittiert Elektronen, welche mittels der Tiegelspannung auf den Tiegel gelenkt werden und diesen durch den Aufprall erhitzen.

Die Betriebsparameter des Elektronenstrahlverdampfers werden im Kapitel 5.2 über die experimentellen Methoden der externen Emission näher vorgestellt.

4.5 Probenhalter

Das zentrale Element der Experimente ist der Probenhalter, welcher in drei Bereiche unterteilt und in Abbildung 4.4 abgebildet ist.

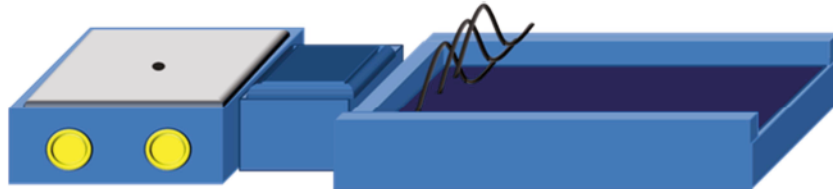


Abbildung 4.4: In den Experimenten verwendete Probenhalter. Links ist ein Faraday Cup, in der Mitte eine Mulde zur Untersuchung von pulverisierten Proben und rechts eine Einschiebmöglichkeit für Probenträger mit drei elektrisch isolierten Elektroden zum Kontaktieren.

Auf der linken Seite liegt ein Faraday-Cup (schwarzer Punkt), mit welchem es möglich ist, den Gesamtionenstrom zu messen. Dank des Aufbaus des Cups [69] werden alle durch das Auftreffen der Primärionen extrahierten Sekundärionen und -elektronen wieder aufgefangen, wodurch eine direkte Messung des Ionenstroms möglich ist. Der Faraday-Cup wird durch ein Stück Indiumblech mit ausgestanztem Loch bedeckt, an welchem Zerstäubungsexperimente durchgeführt werden können. Der Probenhalter selbst ist mit Keramik (gelb) isolierten Schrauben am Manipulator befestigt, wodurch sich die Möglichkeit bietet, den gesamten Probenhalter auf ein einstellbares Potential zu legen. Die mittlere Position des Probenhalters bietet Raum für pulverförmige Proben oder fluoreszierendes Pulver, welches dort in einer Vertiefung eingelassen werden kann. Durch den Beschuss des Pulvers kann hier z. B. das Strahlprofil des Ionenstrahls visualisiert werden. Im rechten Teil des Probenhalters gibt es eine Einschiebmöglichkeit für extern gefertigte Probenträger, welche mithilfe des Transferstabs aus der Transferkammer direkt in die Halterung geschoben werden können. Zusätzlich gibt es drei Molybdän-Elektroden, welche elektrisch isoliert eine dreifache Kontaktierung eines eingeschobenen Probenträgers ermöglichen. Die (vorgefertigten) Probenträger aus Molybdän können beliebig bestückt werden. In Abbildung 4.5 ist exemplarisch ein Probenträger zu sehen, auf welchem ein MIM-System aufgebracht worden ist (siehe Anhang A.1).

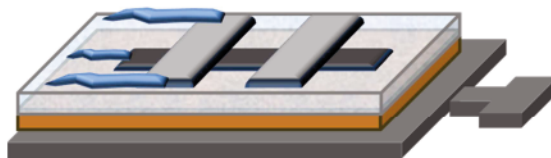


Abbildung 4.5: Probenträger mit einem MIM-System. Von unten nach oben ist der Molybdänprobenträger, ein Stück doppelseitiges Kupferklebeband, ein Deckglas aus der Mikroskopie zur elektrischen Isolation und oben drauf die Probe zu erkennen, welche mit Leitsilber (blau) zu den Elektroden verlängert wird.

Auf dem Probenträger befindet sich ein Stück Kupferklebeband (braun), welches ein Stück Mikroskopier-Deckglas einer Dicke von 0.1 mm auf dem Probenträger fixiert. Auf diesem Deckglas können die gewünschten Proben (in obigem Fall ein MIM-System) elektrisch isoliert aufgebracht und die Kontakte mit Leitsilber (blau) zu den Positionen verlängert werden, an welchen nach Einschub in den Probenhalter (Abbildung 4.4) die drei Elektroden aufliegen werden.

Der Manipulator ermöglicht eine Verschiebung des Probenhalters entlang aller drei Raumachsen (x , y , z) und eine Rotation um die x -Achse. Durch die Rotation um den Winkel Θ kommt es zu einer Verbreiterung der Strahlprofile, da die unter senkrechtem Einfall kreisförmigen Beschussflecken A_{Spot} mit Radius a unter schrägem Einfall aufgrund der mit zunehmendem Beschusswinkel wachsenden Hauptachse $b = a/\cos(\Theta)$ zu Ellipsen werden.

$$A_{Spot}(\Theta) = \pi ab = \pi \frac{a^2}{\cos(\Theta)} \quad (4.1)$$

Wenn das Strahlprofil (basierend auf Tabelle 4.3) zu groß gewählt ist, kommt es so bei der Messung der Winkelabhängigkeit zu einer messtechnisch bedingten Diskriminierung des Messsignals, da Projektile die Probe verfehlen.

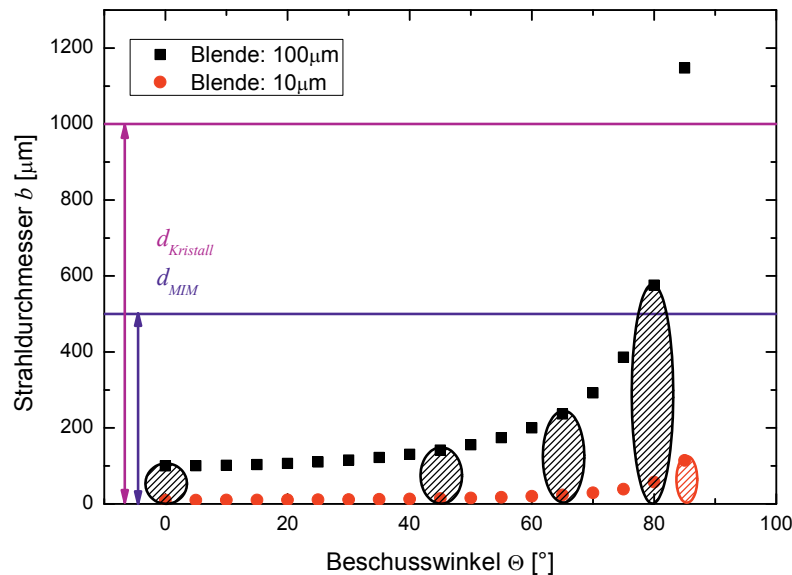


Abbildung 4.6: Vergrößerung des Beschussflecks aufgrund des wachsenden Beschusswinkels

In Abbildung 4.6 ist die beschusswinkelabhängige Vergrößerung der Ellipse aufgetragen. Wie zu erkennen, nimmt der Durchmesser der Beschussflecke insbesondere bei streifenförmigem Einfall dramatisch zu, sodass dieser (ab Blendengröße 8) größer als der Durchmesser der MIM-Systeme (Blau) oder der Einkristalle (Violett) werden kann. Darüber hinaus ist

zu beachten, dass die Blendendurchmesser in Tabelle 4.3 nur den Strahldurchmesser in der Kanone festlegen, dieser sich auf dem Weg zur Probe aber wieder vergrößern kann, sodass eine separate Strahlvermessung auf der Probe nötig ist. Erfahrungsgemäß ergibt sich so für eine 100 μm -Blende ein tatsächlicher Strahldurchmesser von ungefähr 150 μm auf der Probe. In den Experimenten wurde daher vor den Messungen darauf geachtet, dass der Durchmesser des Beschussstrahls passend zur untersuchten Probe gewählt wurde.

Hierbei ist zu beachten, dass die Drehachse nicht durch den Probenhalter läuft, sondern sich leicht darüber befindet. Dies hat zur Folge, dass sich der relative Ort des Beschusses auf der Probenoberfläche ändert, wenn die Probe um den Winkel Θ verkippt wird.

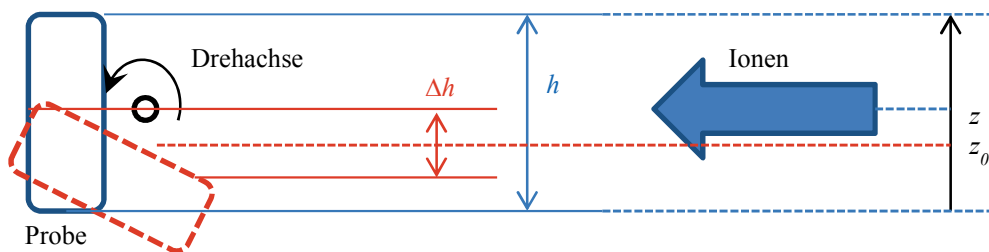


Abbildung 4.7: Relative Änderung der Probenposition bei Verkipfung des Probenhalters beim Beschuss durch einen Ionenstrahl.

Wenn der Strahldurchmesser basierend auf Abbildung 4.6 maximal so groß wie $2b = \Delta h$ (mit b als langer Halbachse des Beschussflecks) ist, gibt es zwei Möglichkeiten diesem Problem zu begegnen:

- Vorheriges Justieren der Probe: Wenn der Strahl auf die Höhe $z = z_0$ eingestellt wird, sodass er sowohl bei senkrechten als auch bei streifendem Einfall komplett auf die Probenoberfläche trifft, so muss der Strahl während der Messung der Winkelabhängigkeit nicht mehr nachjustiert werden.
- Sukzessives Nachregeln der Probehöhe: Wenn die Startposition des Strahls zu Anfang $z \neq z_0$ beträgt oder die Probe während der Messung in z -Richtung verfahren wird, so muss die Probe während der Messung durch Verschiebung der z -Achse auf die Position $z = z_0$ gefahren werden.

Es empfiehlt sich, vor der Messung einmal bei den beiden Extrema $\Theta = 0^\circ$ und $\Theta = 80^\circ$ zu kontrollieren, ob $z = z_0$ ist (also ob der gemessene Strom beim Verfahren von z unverändert ist). Ist dies nicht der Fall, so muss die z -Koordinate dynamisch während der Messung geändert werden.

5 Experimentelle Durchführung (externe Emission)

5.1	Redesign des Probenhalters.....	55
5.2	Probenpräparation: Silberfilme	57
5.3	Probenpräparation: Silber-Einkristalle.....	58
5.4	Messmethodik	63

5.1 Redesign des Probenhalters

Um die externe Elektronenemission bestimmen zu können, muss die Anzahl der auftretenden Ionen und die der emittierten Elektronen bekannt sein. Da diese geladene Teilchen sind, können sie durch Strommessungen bestimmt werden. Um die Strombeiträge ankommender Ionen und emittierter Elektronen zu trennen, gibt es zwei Möglichkeiten:

- (1) Die Probe wird auf eine einstellbare Spannung U_{Koll} gelegt und so ein attraktives bzw. repulsives elektrisches Feld über der Probe erzeugt [70]. Der Vorteil liegt darin, dass kein weiterer Umbau benötigt wird. Der Nachteil besteht darin, dass das Strommessgerät auf U_{Koll} floaten muss und durch das Probenpotential auch andere (in der Kammer befindlichen) Ladungsträger angezogen werden können, welche das gemessene Stromsignal verfälschen können.
- (2) Die Probe wird auf Erdpotential gelegt und die Potentialdifferenz mittels eines hochlegbaren Gitters oder Kollektors um die Probe herum zu realisiert [71]. Hier besteht der Vorteil darin, dass die Messgeräte nicht potentialfrei sein müssen und der Kollektor die Probe von Fremdeinflüssen abschirmt, da er die störenden Ladungsträger auffängt.

In dieser Arbeit wurde Möglichkeit (2) gewählt und der Probenhalter um einen Kollektor erweitert. Eine Skizze des Aufbaus ist in Abbildung 5.1 zu sehen. In diesem neuen Design ist der aus Aluminium gefertigte Kollektor (hier in halbtransparent dargestellt) fest auf dem bereits in Abbildung 4.4 gezeigten Probenhalter verbaut. In der Mitte ist der Kollektor geschlitzt, sodass die Probe mit Ionen unter allen möglichen Winkeln zwischen -90° und 90° relativ zur Probennormalen beschossen werden kann. Der Probenhalter samt Kollektor kann komplett auf ein Potential von $U_{Koll} \pm 100$ V gelegt werden, sodass die Probe nahezu vollständig von äußeren Ladungsträgern und sonstigen Störeinflüssen abgeschirmt wird.

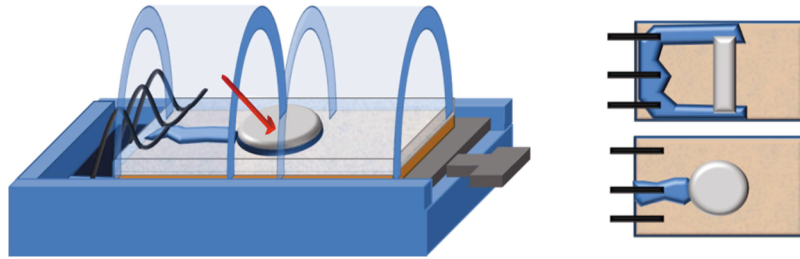


Abbildung 5.1: Redesign des Probenhalters mittels eines fest montierten Kollektors. Dieser ist in der Mitte geteilt, sodass anfliegende Ionen (rot) unter jedem Winkel auftreffen können. Dazu sind recht zwei mögliche Bestückungen des Probenträgers mit einem Silberfilm (oben) und einem Einkristall (unten) zu sehen.

Um die Auswirkungen auf das Experiment abzuschätzen, wurde die komplette Kollektor-Proben-Geometrie im Programmpaket SIMION 8.0⁶ simuliert (siehe Abbildung 5.2). Der Aufbau aus Probe (unten, liegt auf Erdpotential) und Kollektor (oben, liegt auf 100 V) kann hier auf verschiedene Potentiale (rot) gelegt werden um den Einfluss der Ablenkspannung auf die anfliegenden Ionen und auf die emittierten Elektronen zu studieren. Aus den Simulationen ergeben sich folgende Erkenntnisse:

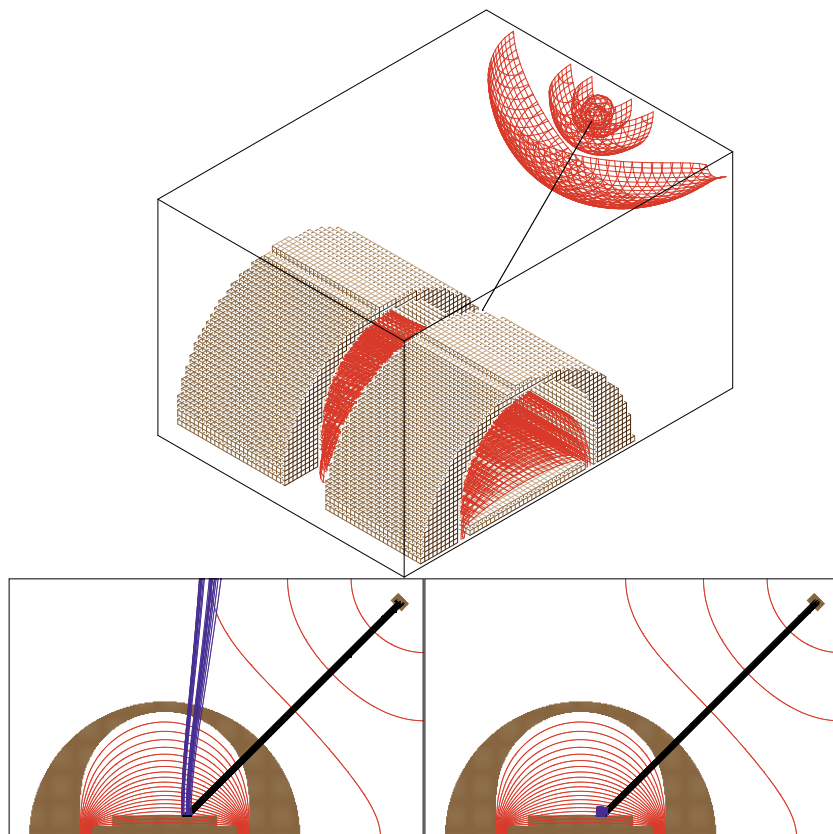


Abbildung 5.2: SIMION - Simulation des Kollektors (braun) bei Ionenbeschuss (schwarz). Oben ist eine dreidimensionale Skizze des Kollektors abgebildet, wobei die roten Linien die Äquipotentiallinien bei angelegter Kollektorspannung U_{Koll} darstellen. Die Bilder links und rechts unten zeigen den Einfluss der attraktiven (100 V, links) und repulsiven (-100 V, rechts) Kollektorspannung U_{Koll} auf die im Schlitz emittierten Elektronen (blau) mit einer Energie von 10 eV.

⁶ <http://simion.com/>

- Je nach Anflugwinkel, Projektilenergie und Kollektorspannung kommt es zu einer leichten Ablenkung der Primärionen. Diese Ablenkung kann dazu führen, dass der beschossene Bereich auf der Probe verschoben wird, was bei der Messung berücksichtigt werden muss. Im Extremfall, d. h. streifender Einfall bei 85° relativ zur Oberflächennormalen und Beschuss mit 5-keV Argon-Ionen, ergibt sich eine Verschiebung des beschossenen Bereichs zwischen beiden Extremfällen $U_{koll} = \pm 100$ V von rund $100\text{ }\mu\text{m}$. Zusätzlich verändert sich der Beschusswinkel um 0.1° . Dieser Effekt wird bei größeren Beschussenergien bzw. steileren Winkeln abgeschwächt.
- Obwohl die Elektronen innerhalb des Öffnungsschlitzes emittiert werden, reicht dank der \vec{E} -Feldüberlagerung eine Kollektorspannung von bis zu $U_{Bias} = 100$ V aus um alle emittierten Elektronen wieder einzufangen (siehe auch unterer Teil von Abbildung 5.2).

5.2 Probenpräparation: Silberfilme

Um die externe Elektronenemission von $\text{Ar}^+ \rightarrow \text{Ag}$ zu untersuchen, wurden im Rahmen dieser Arbeit mithilfe des in Kapitel 4.4 vorgestellten Elektronenstrahlverdampfers polykristalline Silberschichten hergestellt. Diese wurden unter Vakuumbedingungen in der Präparationskammer erzeugt und unter Vakuum direkt in die Analysekammer geschleust, sodass die Filme zu keiner Zeit Atmosphärendruck ausgesetzt waren.

Größe	Wert	Einheit
U_{Heater}	5	V
I_{Heater}	1.37	A
U_{Tiegel}	1000	V
I_{Tiegel}	29	mA

Tabelle 5.1: Betriebsparameter des Elektronenstrahlverdampfers zur Erzeugung dünner polykristalliner Silberschichten.

Die Betriebsparameter des Elektronenstrahlverdampfers sind in Tabelle 5.1 aufgeführt. Mit diesen Parametern ist es möglich, bei einer konstanten Verdampfungsrate von 0.1 nm/s dünne polykristalline Silberschichten mit einer Schichtdicke von $25\text{--}30\text{ nm}$ zu erzeugen.

Die Qualität der Schichten wird in Abbildung 5.3 näher dokumentiert. Mithilfe eines Rastkraft-Mikroskops (Typ: NanoPics) wird dort eine aufgedampfte Silberschicht auf einer Fläche von $100 \times 100\text{ }\mu\text{m}^2$ untersucht und gezeigt, dass sich größtenteils homogene Silberfilme ergeben. Die weißen Punkte in Abbildung 5.3 stellen eine Verunreinigung dar und sind keine Besonderheiten der Probe. Wie zudem aus Tabelle 5.2 zu entnehmen ist, ergibt sich mithilfe eines Linescans über eine mittlere Strecke von $53\text{ }\mu\text{m}$ eine mittlere Rauigkeit von $1\text{--}3\text{ nm}$.

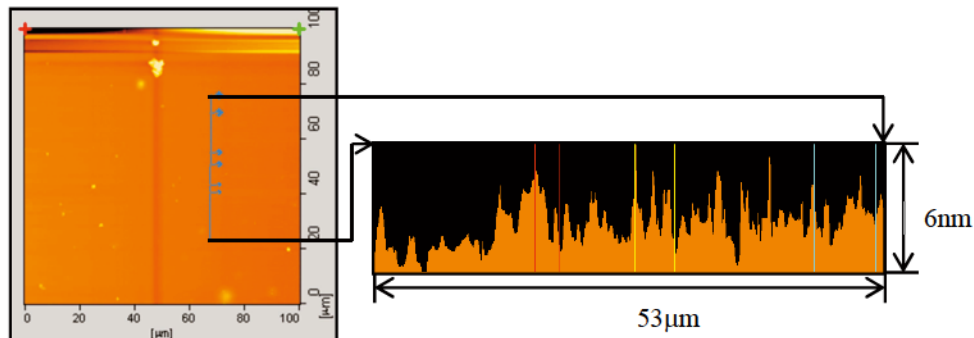


Abbildung 5.3: AFM-Messungen an einem unbeschossenen polykristallinen Silberfilm mit einer Schichtdicke von 25 nm, welcher bei Raumtemperatur (300 K) aufgedampft wurde.

Farbe	Rauigkeit [nm]	Abstand [μm]
Rot	3.51	2.58
Gelb	3.36	4.22
Blau	1.15	6.40

Tabelle 5.2: Rauigkeitsmessung an einem aufgedampften Silberfilm mit einer Dicke von ungefähr 25 nm. Der hier gezeigte Bereich wurde bei einer Umgebungstemperatur von 300 K aufgedampft und vor Aufnahme des AFM-Bildes nicht beschossen.

Wie bereits von Stefan Meyer [7] in seiner Arbeit untersucht wurde, werden bei der thermischen Verdampfung von Silber auch Silber-Ionen erzeugt, welche ebenfalls in die Schicht implantiert werden. Diese haben jedoch in dem hier skizzierten Fall keinen großen Effekt, da die externe Emission ins Vakuum untersucht wird und die durch geladene Silberatome eingeschlossenen Ladungen durch die elektrische Kontaktierung des Silberfilms neutralisiert werden.

5.3 Probenpräparation: Silber-Einkristalle

Um aufbauend auf den Messungen der externen Elektronenausbeuten an polykristallinen Silberschichten den Einfluss der Kristallstruktur auf die Ausbeute zu ermitteln, wurden in dieser Arbeit auch Einkristalle beschossen. Diese Kristalle ($\varnothing = 1 \text{ cm}$, $h = 1 \text{ mm}$) wurden mit drei Oberflächenorientierungen (100), (110) und (111) von der Firma Mateck erworben und vom Hersteller einseitig mit einer Rautiefe von $< 0,03 \mu\text{m}$ poliert sowie einer Orientierungsgenauigkeit von $< 2^\circ$ ausgeliefert. In Abbildung 5.4 ist eine AFM-Aufnahme der Oberfläche eines unbeschossenen und unbehandelten Ag(100)-Kristalls zu sehen. Wie zu erkennen ist, gibt es auf der Oberfläche leichte Verunreinigungen (weiße Punkte in Abbildung 5.4), sonst scheint sie glatt zu sein. Diese Annahme relativiert sich jedoch bei der Betrachtung des rechts davon abgebildeten Linescans, aus welchem hervorgeht, dass die Oberfläche des Einkristalls eine stufenförmige Struktur mit verschiedenen Plateauflächen aufweist. Diese Plateauflächen weisen an den Kanten Sprünge im Bereich von 20 nm auf. Dies ist auf die angegebene Rauigkeit von $0,03 \mu\text{m}$ zurückzuführen. Auf einer Stufe wird

hingegen eine mittlere Rauigkeit von 8 nm beobachtet (siehe Tabelle 5.3). Da beim Ionenbeschuss eine Fläche mit einem Durchmesser von rund 100-150 μm beschossen wird, ist davon auszugehen, dass es im Mittel keinen Unterschied macht, aus welcher Stufe die Elektronen emittiert werden, solange die Stufe an sich flach ist.

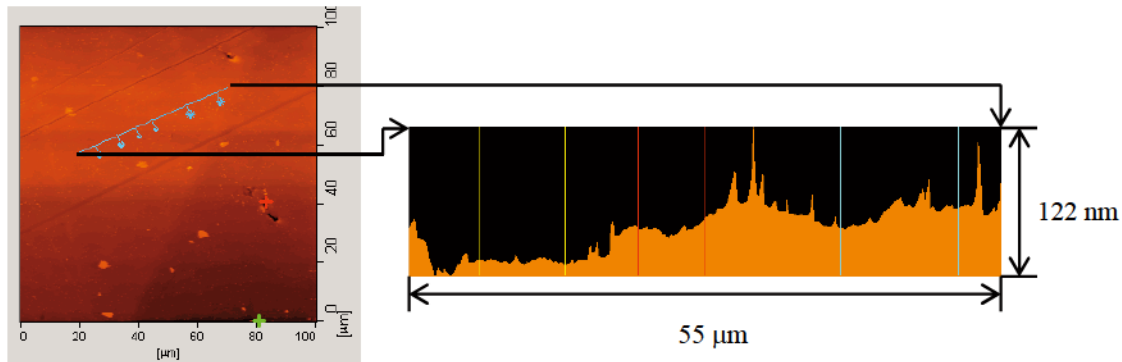


Abbildung 5.4: AFM-Aufnahme einer unbeschossenen Ag(100)-Oberfläche

Farbe	Rauigkeit [nm]	Abstand [μm]
Rot	7.6	6.2
Gelb	4.1	8.1
Blau	16.7	11.1

Tabelle 5.3: Rauigkeitsmessungen an einem unbeschossenen Ag(100)-Einkristall

Vor dem Einbau wurden die Einkristalle mit Isopropanol im Ultraschallbad von groben Verunreinigungen gesäubert und danach mit Leitsilber (wie rechts in Abbildung 5.1 zu sehen ist) zentral auf dem Probenträger geklebt. Nach dem Einschleusen wurden sie darauf durch Bestrahlung mit der Argon-Ionenquelle gesäubert, um auf der Oberfläche adsorbierte Fremdatome zu zerstäuben. In der Literatur [72] werden für die Säuberung von metallischen Einkristallen Argon-Ionen mit 500 eV Primärenergie und Ströme von bis zu 1-3 $\mu\text{A}/\text{cm}^2$ verwendet, da die Ionen so aufgrund ihrer geringen Energie nicht tief eindringen und die Verunreinigungen durch ihre hohe Dosis abtragen. Die hier verwendete Ionenquelle erreicht jedoch, wie bereits in Tabelle 4.4 zu erkennen ist, erst im Bereich von bis zu 10 keV ihren maximalen Ionenstrom, sodass während des Zerstäubungsvorgangs die Ionen in den Festkörper (ungefähr 5–8 nm für 5 bis 10-keV $\text{Ar}^+ \rightarrow \text{Ag}$) eindringen und dort durch Stoßkaskaden Fehlstellen und Unordnung im Festkörper erzeugen. Um diesen Effekt zu minimieren, werden die Einkristalle mit 5-keV Argon-Ionen unter streifendem Einfall unter einem Winkel von $\Theta = 80^\circ$ beschossen, sodass die hochenergetischen Ionen streifend auftreten. So wurde ihre Energie primär in der Nähe der Oberfläche deponiert, wodurch der Schaden im Festkörper minimiert wurde.

Auf das nach dem Zerstäuben folgende Annealen der Einkristalle wurde im Rahmen dieser Arbeit verzichtet, da die Einkristalle auf den Probenträger aufgeklebt waren. Dies führte dazu, dass die bewährte Technik, das Filament unter der Probe zu montieren und die Probe so von hinten zu heizen [73], ist unserem Fall nicht möglich war. Die daraus resultierenden Einflüsse auf das Experiment werden im Folgenden diskutiert.

In Untersuchungen von Wehner et al. [74, 75] ist das Verhalten von metallischen Einkristalle unter Ionenbeschuss analysiert worden. Dieser beobachtete durch einen orts aufgelösten Detektor das Phänomen, dass die zerstäubten Atome aufgrund der kristallinen Struktur bevorzugt in Richtung der Gittervektoren emittiert werden [74]. Dieses Verhalten wurde von Nagayama [76] und von Wucher [77] verifiziert, indem beide beim Beschuss von Einkristallinen charakteristische Emissionswinkel (sog. Wehner Spots) beobachteten. Eine wesentliche Beobachtung hierbei ist, dass diese Spots auch bei fortschreitender Beschussdauer beobachtet werden, also davon ausgegangen werden kann, dass die Kristalle trotz Beschuss nicht amorphisieren. Dieses Phänomen wurde auch in Computersimulationen [78] bestätigt, in welchen die Teilchendynamik von $\text{Ar} \rightarrow \text{Cu}(001)$ im keV-Bereich studiert wurde. Das wesentliche Ergebnis bestand darin, dass die fcc-Gitterstruktur im Aufschlagbereich durch das auftreffende Ion nach rund 500 fs kurzzeitig amorphisiert wurde, diese aber nach Abkühlung und Koaleszenz über einen Zeitraum von ungefähr 10 ps wieder rekristallisiert.

Im Experiment wurde dieser Effekt von Moon et al. bestätigt, welcher mithilfe von MEIS- (Medium Energy Ion Scattering)[79], LEED- und TEM-Messungen verifizieren konnte, dass zerstäubte metallische Einkristalloberflächen nach Ioneneinschlag (auch) bei Raumtemperatur selbstständig rekristallisieren [80]. Als Hauptgrund hierfür werden die nichtgerichteten metallischen Bindungen in metallischen Einkristallen genannt, sodass, im Gegensatz zu den gerichteten kovalenten Bindungen in Halbleitern, Zwischengitteratomen im abkühlenden Kristall mobil genug sind, um die Oberfläche oder Fehlstellen im Kristall zu erreichen bzw. zu besetzen. Die Versuche wurden an $\text{Cu}(111)$ und $\text{Pt}(111)$ Einkristallen unter Argon-Ionenbeschuss mit Energien von 3-7 keV und Ionendosen von bis zu 10^{17} Teilchen/ cm^2 durchgeführt.

Die in dieser Arbeit verwendeten Einkristalle bestehen zwar aus Silber, besitzen jedoch analog zu $\text{Cu}(111)$ und $\text{Pt}(111)$ eine fcc-Gitterstruktur. Außerdem wurden während einer Messung Ionendosen von bis zu 10^{14} Teilchen/ cm^2 verwendet, welche knapp einen Faktor tausend unterhalb der Ionendosis von Moon liegt [80].

Es ist allerdings davon auszugehen, dass die beschossenen Kristalle sich nicht wieder zu hundert Prozent komplett reorganisieren, sondern dass Spuren des Beschusses an der Kristalloberfläche zurückbleiben. Diese bleibenden Narben in der Oberfläche wurden weiter von Ogilvie untersucht [81-83], indem er LEED-Spektren von Silber-Einkristallen vor und

nach Beschuss mit Argon-Ionen im keV-Bereich analysierte. Wie von Wehner vorhergesagt wird sowohl vor, als auch nach dem Beschuss im LEED-Spektrum ein Beugungsbild der kristallinen Gitterstruktur beobachtet, auch wenn dieses nicht mehr aus scharfen Punkten, sondern verbreiterten Flecken besteht. Darüber hinaus sind im LEED bei der Analyse von beschossenen Bereichen der Probe zusätzliche Reflexe zu sehen, welche ebenfalls eine kristalline Struktur aufweisen [82]. Diese Facetten auf der Kristalloberfläche sind um (112) gegenüber der ursprünglichen Kristallrichtung verkippt und besitzen eine räumliche Ausdehnung von ungefähr 100 Angström. Diese Verkipfung um ungefähr 15° kommt daher, dass sich in Bewegung versetzte mobile Atome im Kristallgitter in close-packed - Richtungen bewegen, bis sie sich an Dislokationslinien sammeln und als Zwischengitteratome verbleiben. Durch das Eintreffen weiterer mobiler Atome bilden sich dort kristalline Blöcke, welche als Reflexe im LEED wahrgenommen werden können [81].

Da dieselbe Projektil-Target-Kombination und ein ähnlicher Energiebereich gewählt worden ist, ist es wahrscheinlich, dass es in unseren Experimenten zu einem ähnlichen Verhalten der Einkristalle gekommen ist. Dies konnte aber im verwendeten AFM bislang nicht verifiziert werden. Die beschussinduzierte Aufrauhung hat jedoch vermutlich keinen großen Effekt auf unsere Ergebnisse, da die hier untersuchten Kristalloberflächen generell eine große Grundraugigkeit aufwiesen. Wie von Teichert et al. [84] weiter untersucht wurde, heilt die Oberfläche eines Ag(100)-Kristalls nach Beschuss auch bei Raumtemperatur mit der Zeit wieder aus. Die erhöhte Temperatur beim Annealen sorgt hier lediglich für ein beschleunigtes Ausheilen.

Da in unseren Experimenten zur Elektronenemission die Austrittsarbeit W eine zentrale physikalische Größe spielt, soll untersucht werden, welchen Einfluss die Rauigkeit der Oberfläche auf die Austrittsarbeit des Kristalls hat. Grundsätzlich wird beobachtet, dass die Austrittsarbeit W mit zunehmender Rauigkeit kleiner wird, da der Dipolbarrierenbeitrag zur Austrittsarbeit mit zunehmender Aufrauhung kleiner wird [85]. Darüber hinaus gibt es eine Arbeit von Li, in welcher der Einfluss der Oberflächenrauigkeit von amorphem Kupfer auf die Austrittsarbeit untersucht wird [86]. Eine Kuperoberfläche wird hierzu zunächst mit Sandpapier aufgeraut und nachfolgend mit verschiedenen Polierpasten Schritt für Schritt wieder geglättet. Die Veränderung der Austrittsarbeit wird mithilfe eines Raster-Kelvin-Mikroskops untersucht, bei welchem eine Kelvin-Sonde mit einem AFM kombiniert wird. Es zeigt sich, dass sich die Austritts-

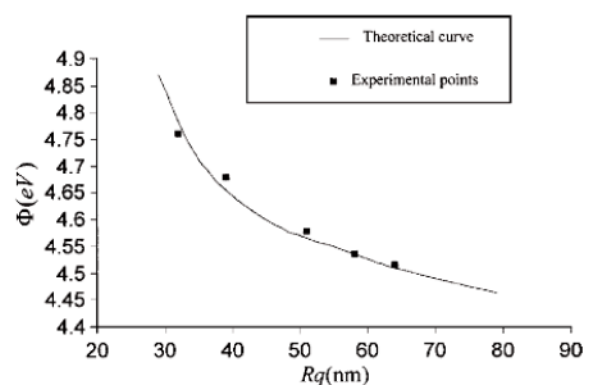


Abbildung 5.5: Abhängigkeit der Austrittsarbeit W (hier Φ) von Kupfer von der mittleren Rauigkeit R_q der Oberfläche. Bild entnommen aus [86].

arbeit antiproportional zur Oberflächenrauigkeit verhält, W also mit zunehmender Rauigkeit kleiner wird. Dies ist auch in Abbildung 5.5 ersichtlich, in welcher die Abhängigkeit der Kupfer-Austrittsarbeit von der mittleren Rauigkeit R_q zu sehen ist. Die relative Änderung der Austrittsarbeit beträgt ungefähr 10 %, wobei der Effekt bei geringer Rauigkeit $R_q < 20$ nm immer stärker wird. Aufgrund der identischen Kristallstruktur von Kupfer und Silber ist somit davon auszugehen, dass die kristallinen Austrittsarbeiten in unseren Experimenten ebenfalls von den Literaturwerten abweichen und so zu Änderungen in den gemessenen Ausbeuten führen.

Zusammenfassend ist jedoch davon auszugehen, dass die beschossenen Einkristalle trotz fehlendem Annealvorgang unter Berücksichtigung der Rauigkeit von $0.03 \mu\text{m}$ eine kristalline Struktur aufwiesen und diese auch nach dem Ionenbeschuss beibehielten.

Dies wird auch anhand von LEED-Bildern (Abbildung 5.6) bestätigt, welche im Rahmen der Kooperation innerhalb des Sonderforschungsbereichs in der Arbeitsgruppe von Prof. Möller von M. Kaspers und A. Bernhart bei Raumtemperatur aufgenommen wurden. Aufgrund der Aufrauung der Oberfläche sind die Reflexe sehr aufgeweicht, sodass eine veränderte (verringerte) Austrittsarbeit zu erwarten ist. Es ist weiterhin zu erkennen, dass die LEED-Bilder auch nach Ionenbeschuss unverändert sind, sodass davon ausgegangen werden kann, dass die Kristallstruktur unter Ionenbeschuss erhalten bleibt.

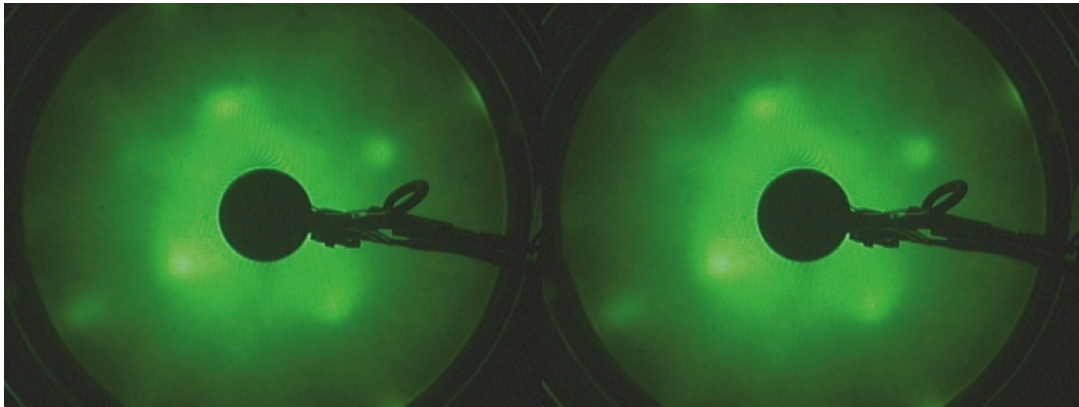


Abbildung 5.6: LEED-Bilder eines beschossenen Ag(100)-Kristalls. Auf der linken Seite ist ein unbeschossener Einkristall im Lieferzustand zu sehen, während er vor dem rechten Bild mit 1.5-keV Ar^+ -Ionen großflächig mit $4 \mu\text{A}$ für 15 Minuten beschossen wurde. Die Energie der Elektronen betrug in diesem Fall 117 eV . Die Bilder wurden im Rahmen der Kooperation innerhalb des Sonderforschungsbereichs in der Arbeitsgruppe von Prof. Möller von M. Kaspers und A. Bernhart aufgenommen.

5.4 Messmethodik

Die zentrale Kenngröße der Experimente zur externen Emission ist die Ausbeute der sekundären Elektronen, welche als das Verhältnis von emittiertem Elektronenstrom zu auftreffendem Primärionenstrom definiert ist. In unserem experimentellen Aufbau wurde die Ausbeute durch das Messen und Vergleichen der Probenströme für verschiedene Kollektorspannungen bestimmt.

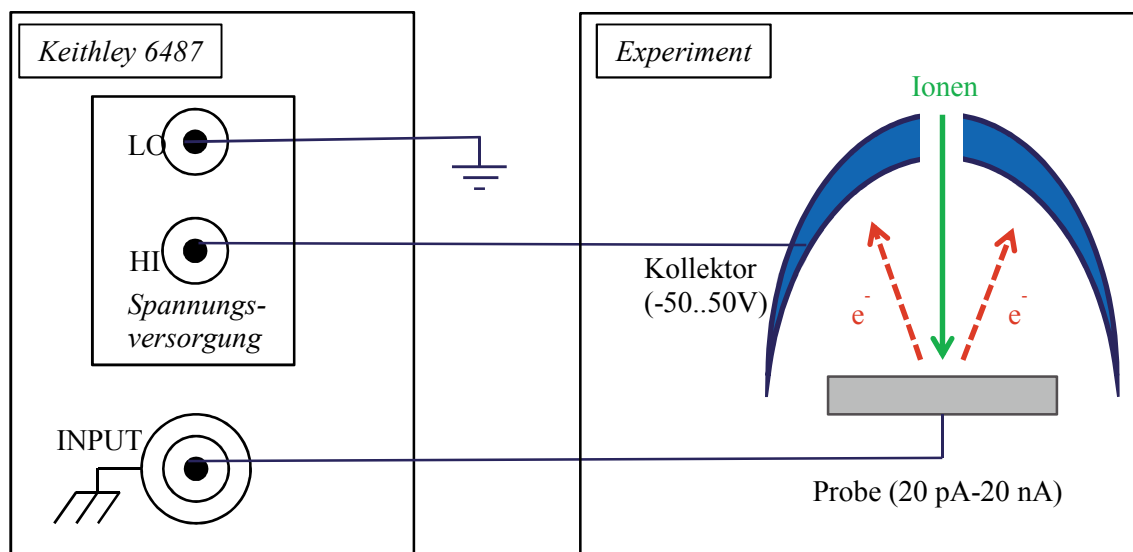


Abbildung 5.7: Hauptsächlich verwendeter Messaufbau zur Bestimmung der Probenströme durch Verwendung eines Keithley 6487 Picoamperemeters.

Die Proben wurden hier kontinuierlich mit Strömen im nA-Bereich (Säuberung) und einigen 100 pA (Messung) beschossen und die Werte direkt über das Display des Messgeräts ausgelesen. Die bei der Messung eingesetzten Messgeräte sind in Abbildung 5.7 aufgeführt.

Je nach Messzweck wurden die Geräte folgendermaßen kombiniert:

- Keithley 485 Picoamperemeter + FUG MCN 14-650 (650V-Netzteil):
In dieser Kombination wurden die Strommessung sowie die Spannungsversorgung auf zwei verschiedene Geräte verteilt.
- Keithley 6487 Picoamperemeter:
Durch den Einsatz des Keithley 6487 konnte der Messaufbau auf ein Gerät reduziert werden, da das Keithley 6487 neben der Strommeseinheit noch eine (programmierbare) Spannungsversorgung beinhaltet. So konnte mit dem Gerät auf Knopfdruck gleichzeitig die Kollektorspannung eingestellt und sofort der resultierende Strom gemessen werden.
- Batterie/Erdung:

Die Bestimmung des Stromsignals bei $U_{Koll} = 0$ V ist sehr fehlerbehaftet, da schon kleinste Abweichungen von 0 V einen Einfluss auf die emittierten Elektronen haben können. Um eine saubere Null zu bekommen, wurde deswegen der Kollektor teilweise geerdet oder durch ein batteriebetriebenes Netzteil vom Stromnetz entkoppelt.

Ein Nachteil bei der Bestimmung der Elektronenausbeute über die Messung der Probenströme liegt darin, dass beim Emissionsprozess auf der Probe die Summe verschiedener Ladungsträger gemessen wird. Der gesamte Probenstrom I_{ges} setzt sich zusammen aus:

$$I_{ges} = I_{Ion} + e^- - I^- + I^+ \quad (4.2)$$

In Gleichung (4.2) steht I_{Ion} für den Primärionenstrom der (in unserem Fall) positiv geladenen Argon-Ionen, e^- für den Anteil der emittierten sekundären Elektronen sowie I^- und I^+ für den Anteil der negativ bzw. positiv geladenen Sekundärionen. Hierbei ist zu beachten, dass der Strom der sekundären Ionen von dem jeweiligen chemischen Element abhängt. Besteht eine Probe aus mehr als einem Element, gibt es hier verschiedene Beiträge zu dem Sekundärionensignal, da die zerstäubten Elemente unterschiedliche Sekundärionisationswahrscheinlichkeiten haben können [87]. Um die einzelnen Strombeiträge zu trennen, wurde in der Messung der Kollektor auf Spannungen zwischen $U_{Koll} = \pm 100$ V gelegt und der Probenstrom in Abhängigkeit von der Kollektorspannung gemessen. Die Philosophie der Messmethodik wird in Abbildung 5.8 veranschaulicht.

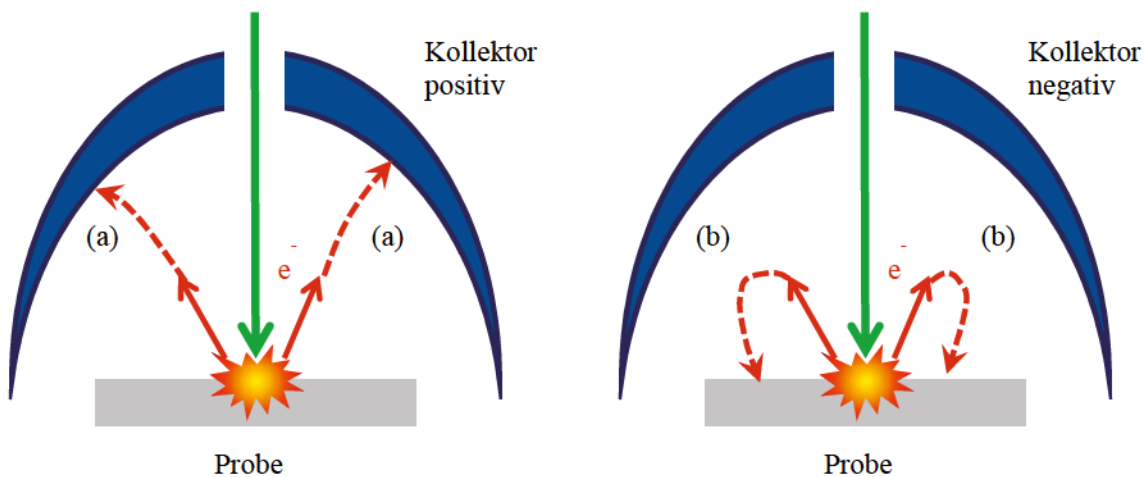


Abbildung 5.8: Schema der Messung der externen Elektronenemission. Durch eine positive (a) sowie eine negative (b) Kollektorspannung ist es möglich, Einfluss auf die durch Ionenbeschuss (grün) emittierten Elektronen (rot) zu nehmen.

Im Messaufbau ist es jedoch nicht möglich, das Signal der negativ geladenen Sekundärionen von dem der emittierten Elektronen zu trennen. Dies könnte mit einem anderen Konzept realisiert werden, welches vorsieht, den Strom der emittierten Teilchen durch ein Mag-

netfeld zu schicken. Durch die resultierende Kreisbewegung können so die sekundären Ionen, welche aufgrund der größeren Masse einen größeren Radius aufweisen, von dem Beitrag der sekundären Elektronen getrennt werden.

Vor der eigentlichen Messung wurden die Proben (Einkristalle & polykristalline Proben) unter streifendem Einfall mit 5-keV Ar^+ Ionen gesäubert, bis das gemessene Stromsignal einen konstanten Wert aufwies. Die anfängliche Variation des gemessenen Probenstroms wird durch den Einfluss von Fremdatomen verursacht, welche die Austrittsarbeit ändern und somit für einen vergrößerten Beitrag emittierter Elektronen sorgen können, oder auch selbst eine höhere Ionisationswahrscheinlichkeit aufweisen können. Die Erreichung eines Sättigungswertes ist ein Indiz dafür, dass die Fremdatome zerstäubt worden sind und die Oberfläche gesäubert ist. Basierend auf Gleichung (4.2) messen wir in unserem Fall (Abbildung 5.8) für die beiden Fälle (a) und (b) mit verschiedenen Spannungen (-100V..+100V) [71] folgende Probenstrombeiträge:

$$(a) I_{pos}(U_{Koll} = 100 \text{ V}) = I_{Ion} + e^- + I$$

Bei positiver Kollektorspannung werden die positiv geladenen Sekundärionen I^+ durch das Gegenfeld auf die Probe zurückgedrückt und geben somit keinen Strombeitrag bei der Messung.

$$(b) I_{pos}(U_{Koll} = -100 \text{ V}) = I_{Ion} - I^+$$

Im Fall negativer Kollektorspannungen werden die negativ geladenen Teilchen, die Elektronen und die negativ geladenen Sekundärionen, auf die Probe zurückbeschleunigt und tragen daher nicht zum gemessenen Stromsignal bei.

Im Idealfall (d. h. keine Verunreinigungen der Probe) können die Silber-Sekundärionen vernachlässigt werden, da ihre Ionisationswahrscheinlichkeit laut Literatur [87] bei weit weniger als ein Prozent $\approx 10^{-5}$ liegt und ihr Strombeitrag somit vernachlässigbar ist. Ein weiterer Effekt, welcher beachtet werden muss, ist die Potentialemission von Elektronen, welche aufgrund der potentiellen Ionisationsenergie des Projektils ausgelöst wird [9]. Um beide Emissionsarten voneinander zu trennen und nur die kinetische Emission zu untersuchen, muss der Beitrag der Potentialemission Γ_{PEE} [54, 88] von der gesamten Ausbeute abgezogen werden. Laut Kovacs [17] beträgt für den Fall $\text{Ar}^+ \rightarrow \text{Ag}$ der Wert für die Potentialemission $\Gamma_{PEE} = 0.06$.

Der Messzyklus zur Bestimmung der Winkelabhängigkeit der externen Ausbeute ist wie folgt:

1. Verkippung der Probe um $\Theta = 85^\circ$ (großflächiger Beschussfleck, wenig Eindringtiefe) und Beschuss mit einem DC-Ionenstrahl, bis sich nach dem Säuberungsprozess ein konstantes Signal einstellt.
2. Messung von I_{neg} und I_{pos} unter 85° .

3. Sukzessive Verringerung des Beschusswinkels in 5°-Schritten bis hin zu senkrechtem Einfall (0°).
4. Erneute Kontrollmessung bei 85°, um Messwerte zu bestätigen.

Anhand von Testmessungen wurde zudem sichergestellt, dass der Faraday-Cup-Strom sich nicht wesentlich von dem Strom I_{neg} unterscheidet, sodass auf I_{neg} normiert werden kann.

Es ergibt sich somit für die Ausbeute emittierter Elektronen:

$$\Gamma_{KEE} = \frac{I_{pos}(\Theta) - I_{neg}(\Theta)}{I_{neg}(0)} - \Gamma_{PEE} \quad (4.3)$$

Das Θ steht hier für den Beschusswinkel relativ zur Oberflächennormalen, unter denen die Primärionen auf die Probe treffen. Die Ionen haben nun mit zunehmendem Beschusswinkel eine steigende Reflexionswahrscheinlichkeit, sodass der Anteil eindringender Ionen mit zunehmendem Winkel abnimmt. Dies hat zur Folge, dass der gemessene Strombeitrag zurückgeht, obwohl der tatsächliche Primärionenstrom unverändert bleibt. Daher wird auf den Strom bei senkrechtem Einfall normiert, da hier der Anteil reflektierter Ionen verschwindend gering ist. Hierbei ist wichtig zu erwähnen, dass obwohl eine gewisse Anzahl von Ionen reflektiert wird, diese trotzdem aufgrund der Wechselwirkung mit der Oberfläche Energie abgeben und so elektronische Anregung erzeugen können [89, 90].

6 Ergebnisse der externen Elektronenemission

6.1	Messergebnisse	67
6.2	Energieabhängigkeit der Elektronenemission	68
6.2.1	Modell der ballistischen Elektronenemission	69
6.2.2	Surface Assisted Kinetic Electron Emission	71
6.3	Vergleich der Ausbeuten für verschiedene Kristallstrukturen	73
6.4	Beschusswinkelabhängigkeit der externen Elektronenemission	79
6.4.1	Polykristalline Proben	79
6.4.2	Einkristalline Proben	82
6.5	Fazit	85

6.1 Messergebnisse

In Abbildung 6.1 sind die Ergebnisse der Strommessung (Gleichung (4.2)) zu sehen, welche mit der Projektil-Target-Kombination $\text{Ar}^+ \rightarrow \text{Ag}_{\text{poly}}$ gemessen wurden. Aus Gründen der Übersichtlichkeit werden hier exemplarisch die gemessenen Ströme unter einem Auftreffwinkel von $\Theta = 0^\circ$, 30° und 60° gezeigt.

Wie klar zu erkennen ist, bleibt der Probenstrom im Bereich höherer Spannungen konstant, sodass es scheinbar keine Leckströme aufgrund ohmscher Effekte durch das Glasplättchen zwischen dem Probenträger und der Silberschicht gibt. Diese würden gemäß $U_{\text{Koll}} = R_{\text{Glas}} \cdot I_{\text{Leck}}$ linear mit der Spannung ansteigen. Im Bereich kleinerer Spannungen hingegen ist eine nichtlineare Veränderung des Signals mit der Spannung zu sehen, was daran liegt, dass hier die Teilchen vom Kollektor eingefangen und abgelenkt werden. Die Schwellspannung, welche benötigt wird, um eine Sättigung zu erreichen, liefert auch einen Hinweis über die Energieverteilung der emittierten Elektronen. Des Weiteren ist es ersichtlich, dass der Unterschied zwischen den positiven Signalen für verschiedene Beschusswinkel im Vergleich zu den negativen Signalen deutlich kleiner ist. Dieses scheinbare Paradoxon beruht auf der Tatsache, dass im positiven und negativen Spannungsbereich verschiedene Strombeiträge (I_{pos} und I_{neg}) gemessen werden. Im positiven Strombereich I_{pos} ist es die Summe aus emittierten Elektronen und dem Beschussstrom, während es im negativen Bereich I_{neg} nur der Beschussstrom ist. Wie bereits erwähnt, nimmt das gemessene Signal des Beschussstroms mit zunehmendem Winkel ab, da hier Projektilen mit größerer Wahrscheinlichkeit reflektiert werden. Dies ist auch im Verlauf der Ströme zu sehen, dass die Strombeiträge für größere Winkel immer kleiner werden. Dieser Effekt tritt auch bei positiven Kollektorspannungen auf, wird aber durch den Beitrag der emittierten Elektronen nahezu kompensiert. Erwartungsgemäß (Kapitel 6.4) nimmt die Elektronenausbeute mit

zunehmendem Winkel deutlich zu, sodass hier die Summe aus abnehmendem Primärionstrom und zunehmendem Elektronenstrom das Resultat nahezu konstant hält.

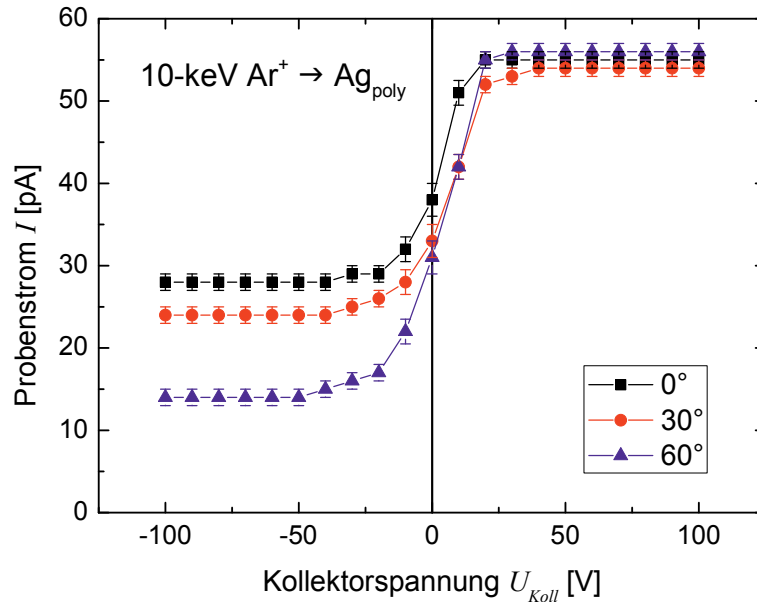


Abbildung 6.1: Gemessene Probenströme in Abhängigkeit der Kollektorspannung für verschiedene Auftreffwinkel

6.2 Energieabhängigkeit der Elektronenemission

Aus denen bereits in Abbildung 6.1 gezeigten Werten können mithilfe von Gleichung (4.3) die Ausbeuten berechnet werden. Im nachfolgenden Diagramm (Abbildung 6.2) sind die Ausbeuten unter senkrechtem Einfall in Abhängigkeit der kinetischen Energie aufgetragen.

Die roten Datenpunkte repräsentieren die im Rahmen dieser Arbeit gemessenen Werte, während die schwarzen Punkte von Kovacs et al. [17] und die blauen von Baragiola et al. [11] gemessen wurden. Wie in Abbildung 6.2 zu sehen ist, steigt die gemessene kinetische Elektronenausbeute, im Einklang mit der Literatur, mit zunehmender kinetischer Energie des Projektils an.

Zur Beschreibung der kinetischen Elektronenemission gibt es in der Literatur verschiedene Modelle, welche bereits im Grundlagenteil (Kapitel 2.3) eingeführt worden sind. Nachfolgend sollen das Modell der ballistischen Elektronen sowie das skE-Modell von Sroubek mit den experimentellen Daten verglichen werden.

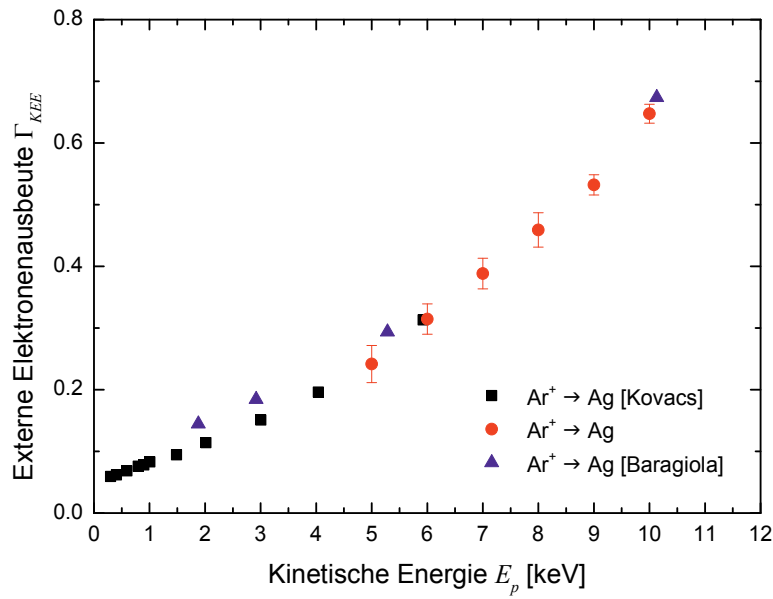


Abbildung 6.2: Abhängigkeit der kinetischen Elektronenausbeute (rot) von der kinetischen Energie des Projektils. Vergleich der Daten mit Baragiola (blau) [11] und Kovacs (schwarz) [17]

6.2.1 Modell der ballistischen Elektronenemission

Das Modell der ballistischen Elektronenemission von Baragiola ist in Gleichung (2.7) skizziert. Dieses kann unter Verwendung des Lindhard-Scharff'schen Formalismus weiter umgeformt werden (Gleichung (2.9)), sodass sich im Fall des senkrechten Beschusses mit $\Theta = 0^\circ$ folgende Energieabhängigkeit der Ausbeute ergibt.

$$\Gamma_{KEE} = A^* \sqrt{E_p} \quad (6.1)$$

Hier ist A^* eine Sammelkonstante, welche alle konstanten Größen in sich vereint. Ausgehend von Gleichung (6.1) sollte sich für Γ_{KEE} eine Ausbeute ergeben, welche mit der Wurzel aus der kinetischen Projektilenergie E_p anwächst.

Beim Vergleich des gemessenen Verlaufes (Abbildung 6.2) mit Gleichung (6.1) fällt auf, dass der Verlauf zwar einerseits ansteigt, dies jedoch nicht proportional zur Wurzel der kinetischen Projektilenergie erfolgt. Dies liegt an verschiedenen Näherungen:

- Beim Vergleich der von SRIM errechneten Verläufe der Electronic Stopping Power (siehe hierzu Abbildung 8.10 in Kapitel 8.3.2) fällt auf, dass diese für die Projektile (10-keV Argon-Projektile) nur in den ersten 2-3 nm konstant ist. Die Näherung, dass dE_p/dx konstant ist, ist demnach nur eingeschränkt gültig.
- Weiterhin wird die gesamte Anregung nur aus Sicht des Projektils betrachtet. Das Projektil gibt jedoch über Nuclear Stopping auch Energie an Festkörperatome ab,

welche ihrerseits wieder Elektronen anregen können. Diese werden von Gleichung (6.1) nicht erfasst.

- Der Weg des Projektils wird innerhalb von λ_{esc} als gradlinig angenommen, d. h. Nuclear Stopping wird nicht berücksichtigt.
- Weiterhin wird davon ausgegangen, dass die elektronische Anregung ausschließlich durch Electronic Friction geleistet wird. Wie in Kapitel 2.1 geschildert, gibt es jedoch auch andere weitere Anregungsprozesse, welche ebenfalls zum Ergebnis beitragen.

Die zentrale, bisher vernachlässigte, Fragestellung ist, ob der in Gleichung (6.1) skizzierte Formalismus für den hier untersuchten Energiebereich gültig ist. Damit ein Elektron den Festkörper verlassen und somit detektiert werden kann, muss der Energieübertrag ΔE beim Stoß mit dem Projektil mindestens so groß wie die Austrittsarbeit des Festkörpers sein. Mithilfe der bereits in den Grundlagen vorgestellten Gleichung (2.11) kommt man auf eine notwendige Projektil-Mindestenergie von $E_{th} = 11.1$ keV bei einer Austrittsarbeit von $W^{Ag} = 4.26$ eV [91].

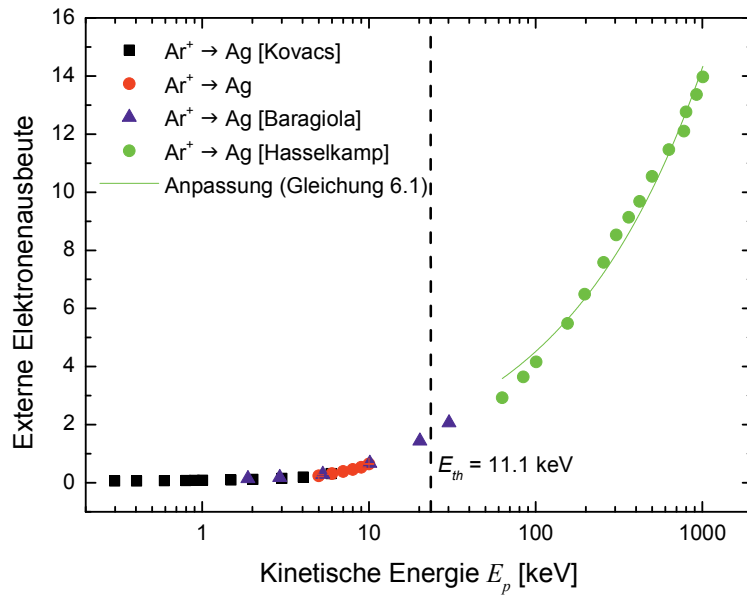


Abbildung 6.3: Abhängigkeit der kinetischen Elektronenausbeute von der kinetischen Energie des Projektils für Energien oberhalb der klassischen Grenze. Die in dieser Arbeit gemessenen Punkte sind in rot eingefärbt, darüber hinaus sind Messdaten von Kovacs (schwarz), Baragiola (blau) und Hasselkamp (grün) aufgetragen. Die grüne Anpassung reproduziert die in Gleichung (6.1) eingeführte Wurzelabhängigkeit der kinetischen Energie mit $A^* = 0.45 \text{ eV}^{1/2}$ als Anpassparameter.

In Abbildung 6.3 werden die Daten aus Abbildung 6.2 um Datenpunkte (grün) für große Primärenergien ergänzt, welche von Hasselkamp [92] gemessen wurden. Es fällt auf, dass sich für große Primärenergien oberhalb der Grenze von 11.1 keV tatsächlich die theore-

tisch postulierte Wurzelabhängigkeit der kinetischen Ausbeute von der kinetischen Energie der Projektilen einstellt. Der Wert von A^* für die grüne Anpassung beträgt hier $0.45 \text{ eV}^{-1/2}$.

Zusammenfassend kann festgehalten werden, dass der Verlauf der Messsignale in Abbildung 6.2 nicht durch klassische Anregungsmechanismen beschreibbar ist. Insbesondere die Schwellenergie von $E_{th} = 11.1 \text{ keV}$ für klassische Emission deutet an, dass klassische Modelle in unserem Fall versagen und wir uns im Sub-Threshold Bereich befinden. Um die Daten beschreiben zu können, wurde daher von Sroubek und Falcone ein Modell entwickelt, welches keine klassische Grenze für die Emission definiert [1].

6.2.2 Surface Assisted Kinetic Electron Emission

Wie im vorherigen Abschnitt angedeutet, erfolgt die in Abbildung 6.2 dargestellte Elektronenemission im Sub-Threshold Bereich unterhalb der klassischen Schwellenergie für ballistische Emission. Die Daten werden daher zunächst mit dem in Kapitel 2.3.2 beschriebenen „Surface Assisted Kinetic Electron Emission“-Modell verglichen. Dieses Modell ist noch nicht endgültig ausgearbeitet, sodass es, basierend auf verschiedenen Annahmen, verschiedene mathematische Formulierungen gibt. Im Folgenden soll der Ansatz von Lörinčik [10] benutzt werden, welcher in bereits Kapitel 2.3.2 (siehe Gleichung (2.16)) ausführlich erläutert wurde:

$$\Gamma_{KEE}^{skE} = B \rho^2 V^2 \cdot \frac{2\gamma v_p}{\pi(E_F + W)} \cdot \exp\left(-\frac{\pi W}{2\gamma v_p}\right) \quad (6.2)$$

Wegen der $1/v_p$ - Abhängigkeit der Exponentialfunktion wird die Ausbeute häufig halblogarithmisch gegen die inverse Geschwindigkeit auftragen, um so aus der Steigung den Exponenten ermitteln zu können.

Werden nun die (roten) Messpunkte in Abbildung 6.2 nach dem neuen Schema aufgetragen und mit Gleichung (6.2) angenähert, so ergibt sich das in Abbildung 6.4 präsentierte Bild. Die in dieser Arbeit gemessenen $\text{Ar}^+ \rightarrow \text{Ag}$ - Ausbeuten aus Abbildung 6.2 sind hier schwarz eingefärbt, wobei die weiteren $\text{Ar}^+ \rightarrow \text{Ag}$ - Ausbeuten von Kovacs, Hasselkamp und Baragiola durch hohle schwarze Symbole abgegrenzt werden. Zu Vergleichszwecken wurden zudem Daten aus der Literatur von Eder et al [44, 93] (rot, grün) hinzugefügt, welche in der Arbeitsgruppe von Prof. F. Aumayr für weitere Projektil-Target Kombinationen gemessen wurden. Alle gezeigten Messreihen wurden für senkrechten Einfall gemessen.

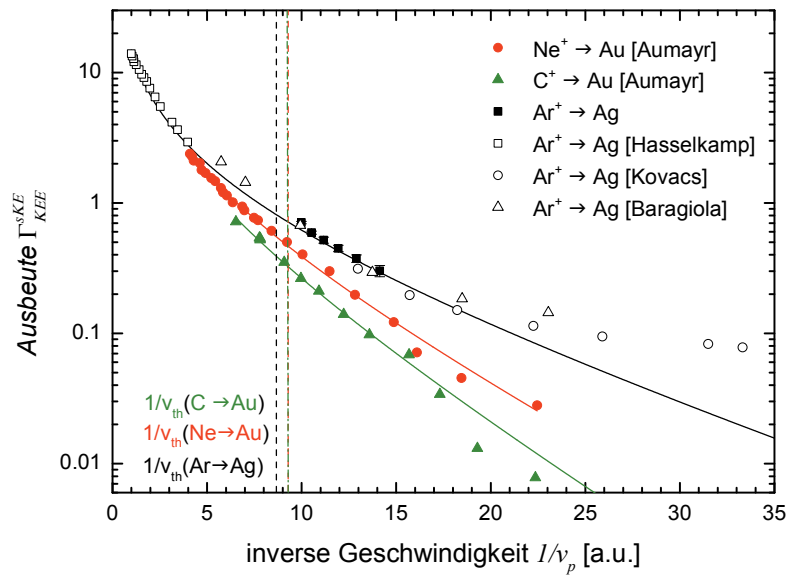


Abbildung 6.4: Externe Elektronenausbeuten für verschiedene Projektil-Target Kombinationen [14, 17, 44, 92, 93]. Auf die Daten wurde der Sroubek-Formalismus des skE-Modells (Gleichung(6.2)) angewendet. Siehe auch Tabelle 6.1.

Wie zu erkennen ist, lassen sich die Daten nur für größere Geschwindigkeiten mithilfe einer reinen Exponentialfunktion beschreiben. Je langsamer die Projektile werden, umso mehr weichen die Daten von der rein exponentiellen Abhängigkeit ab, sodass die Form von Gleichung (6.2) gerechtfertigt scheint. Die zu den Anpassungskurven gehörenden Parameter in Abbildung 6.4 sind in Tabelle 6.1 zu finden:

System	$B\rho^2V^2$ [a.u.]	γ [a. u.]	E_F [eV]	W [eV]
Ar → Ag	3.6	2.54	5.5 [52]	4.26 [91]
Ne → Au [93]	7.14	1.91	8.0 [52]	5.1 [94]
C → Au [44]	7.86	1.6	8.0 [52]	5.1 [94]

Tabelle 6.1: Parameter für die Anwendung von Gleichung (6.2) auf die Daten in Abbildung 6.4

Es fällt auf, dass die in ermittelten Anpassungsparameter in derselben Größenordnung wie die Literaturwerte für andere Projektil-Target-Kombinationen liegen. Um die Gültigkeit der Werte für γ zu überprüfen, wurde von Sroubek in [45] ein Formalismus entwickelt, mit welchem es möglich ist, die Abklinglängen γ numerisch abzuschätzen. Durch eine Weiterführung der theoretischen Überlegungen in Kapitel 2.3.3 lässt sich durch Gleichsetzen der Elektronentemperaturen in Gleichung (2.17) und Gleichung (2.20) ein Zusammenhang zwischen der Lindhard-Scharff'schen Electronic Stopping Power [27] und dem inversen Abklingparameter γ herstellen. Dieser kann laut [45] durch folgende Beziehung ermittelt werden:

$$\gamma = \frac{(8/3)\pi^2 (N_a/(d_e N_e))(Z_1^{7/6} Z_2)}{(Z_1^{2/3} + Z_2^{2/3})^{3/2}} \quad (6.3)$$

Z_1 und Z_2 stehen hier für die Kernladungszahlen von Projektil- und Targetatomen, während N_a und N_e als die Dichte der Festkörperlátome bzw. der freien Valenzelektronen definiert sind. Mit der Näherung, dass jedes Atom im Festkörper ein Valenzelektron beisteuert, ergibt das Verhältnis von N_a und N_e eins. Die Größe d_e beschreibt den bereits in Kapitel 2.3.3 eingeführten Streuquerschnitt zwischen Projektil und Targetelektronen. Um diesen empirisch zu ermitteln, zeichnet Sroubek das System $O \rightarrow Au$ [44] als Referenzsystem aus und berechnet hierfür den Streuquerschnitt durch Einsetzen des experimentell ermittelten γ -Wertes in Gleichung (6.3). Es ergibt sich $d_e = 160$ a.u.. Unter der Annahme [45], dass sich d_e für die aufgeführten Projektil-Target Kombination nicht wesentlich ändert, ist die Größe γ in Gleichung (6.3) nur noch von Z_1 und Z_2 abhängig und kann für die in Tabelle 6.1 aufgeführten Konstellationen berechnet werden. Die Ergebnisse werden in Tabelle 6.2 präsentiert:

Untersuchtes System	γ_{exp}	γ_{cal}
O \rightarrow Au [44]	1.4	1.4
Ne \rightarrow Au [93]	1.91	1.72
C \rightarrow Au [44]	1.6	1.05
Ar \rightarrow Ag	2.54	2.54

Tabelle 6.2: Vergleich der in Tabelle 6.1 präsentierten experimentell ermittelten Werten für den Abklingparameter γ mit berechneten Werten, welche mithilfe von Gleichung (6.3) berechnet wurden.

Wie zu erkennen ist, ergeben sich trotz der groben Annahmen gute Übereinstimmungen der experimentell bestimmten und numerisch berechneten Werten für γ_{cal} , sodass die Annahme, dass γ hauptsächlich durch Z_1 und Z_2 festgelegt wird, gerechtfertigt scheint. Insbesondere der in dieser Arbeit gemessene γ -Wert für das System $Ar^+ \rightarrow Ag$ zeigt (gerundet) eine exzellente Übereinstimmung mit dem berechneten Wert. Die große Abweichung im System $C \rightarrow Au$ ist der Güte der Fitfunktion geschuldet, da Sroubek für denselben Datensatz einen Wert von $\gamma_{exp} = 1.12$ angibt [45].

Abschließend lässt sich festhalten, dass mit dem skE-Modell eine qualitative Beschreibung unserer Daten möglich ist und die dafür benötigten Anpassungsparameter vergleichbar zu den in der Literatur für andere Projektil-Target-Kombinationen angegebenen Werten sind.

6.3 Vergleich der Ausbeuten für verschiedene Kristallstrukturen

Im Folgenden soll untersucht werden, inwiefern sich die kinetisch induzierte externe Elektronenausbeute ändert, wenn die Kristallstruktur variiert wird. Da sich laut Literatur [95-97]

die Austrittsarbeiten bei den verschiedenen Kristallstrukturen ändern, sollten sich die Absolutwerte der Elektronenausbeuten ebenfalls unterscheiden. In Abbildung 6.5 wird die gemessene Ausbeute durch Beschuss mit 5-keV Ar^+ -Projektilen auf Silber für verschiedene Kristallstrukturen gezeigt.

Es ist auffällig, dass sich die Elektronenausbeuten für verschiedene Kristallstrukturen teilweise deutlich unterscheiden. Von links nach rechts sind hier die Ausbeuten für (100)-, (110)- und (111)- Einkristall-Struktur aufgetragen. Rechts im Diagramm ist die Ausbeute für polykristallines Silber. Der Wert, welcher mit (mittel) indiziert ist, stellt den Mittelwert aus allen drei Einkristall-Strukturen dar, welcher im Rahmen der Messfehler mit dem Wert für Γ_{poly} übereinstimmt.

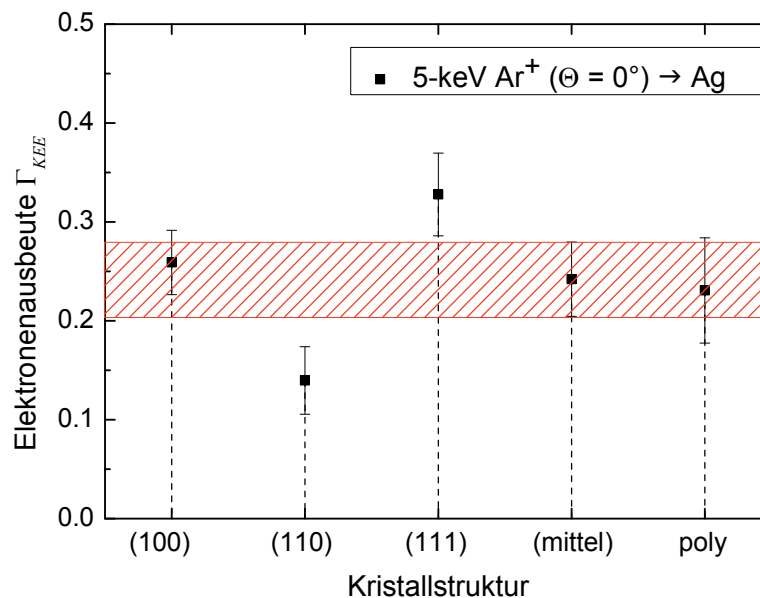


Abbildung 6.5: Gemessene Elektronenausbeuten für verschiedene Kristallstrukturen von Silber beim senkrechten Beschuss mit Argon-Projektilen

Vergleicht man nun die Ausbeuten (Abbildung 6.5) mit den jeweiligen Austrittsarbeiten (Tabelle 6.3), so fällt auf, dass die Reihenfolgen entgegengesetzt sind. Es gibt daher keine direkte Korrelation zwischen Austrittsarbeit und Absolutwert der Elektronenausbeute.

Struktur	Poly	100	110	111
W	4.73 [52]	4.22 [95]	4.14 [95]	4.46 [95]
[eV]	4.3-4.6 [97]	4.64 [96]	4.52 [96]	4.72 [98]

Tabelle 6.3: Literaturwerte [95-98] für die Austrittsarbeiten verschiedener Kristallstrukturen. Je nach Präparation können diese deutlich variieren.

Dies liegt daran, dass die Austrittsarbeiten sehr stark von der Probenpräparation abhängen und kleinste Verunreinigungen (z. B. durch Sauerstoff [98, 99]) oder Unregelmäßigkeiten in der Struktur [82] die Austrittsarbeit stark beeinträchtigen können. Der Einfluss der Ver-

unreinigungen skaliert mit dem Druck in der Kammer, welcher sich in unserem Fall in der Größenordnung von 10^{-9} mbar befand. Aus diesem folgt laut [73] eine Bedeckzeit der Silberoberfläche mit O_2 von etwa 53 min, wenn die Haftwahrscheinlichkeit auftreffender O_2 -Moleküle vereinfacht als eins angenommen wird.

Die gemessenen Ausbeuten in Abbildung 6.5 stimmen qualitativ auch mit Resultaten von Magnuson et al. [100] überein. In diesen wurde beim Beschuss von Cu mit Ar^+ im keV-Bereich für verschiedene Kristallstrukturen dieselbe Reihenfolge der Elektronenausbeuten wie in Abbildung 6.5 für $Ar^+ \rightarrow Ag$ beobachtet. Da Kupfer und Silber beide eine fcc-Gitterstruktur besitzen, sollten sich die relativen Ausbeuten ebenfalls gleich verhalten.

Wie in einem von O. W. Richardson & S. Dushman entwickelten thermionischen Modell der Elektronenemission [46, 101, 102] hervorgeht, weißt die Ausbeute der ins Vakuum emittierten Elektronen neben der Austrittsarbeit W zusätzlich eine starke Abhängigkeit von der Elektronentemperatur T_e auf.

$$\Gamma_{RD} = \left(\frac{A_{Casc} t_{Casc}}{e} \right) \cdot j_{RD} \quad \& \quad j_{RD} = \frac{4\pi me}{h^3} (k_B T_e)^2 e^{\left(-\frac{W}{k_B T_e} \right)} \quad (6.4)$$

Die Größen A_{Casc} und t_{Casc} bezeichnen hier analog zu Kapitel 3.2 die Emissionsfläche sowie die Dauer der kinetisch induzierten Anregung und werden (für die externe Emission) von Kovacs [54] im Fall $Ar \rightarrow Ag$ mit $A_{Casc} = (0.448)^{2/3} \text{ nm}^2$ und $t_{Casc} = 10 \text{ fs}$ abgeschätzt

- Der Wert für A_{Casc} stammt aus Experimenten für den Beschuss von Kupfer mit hochgeladenen Ar^+ -Projektilen [103]. Wenn, ausgehend Lindenblatt [23], angenommen wird, dass sich die Verteilung angeregter Elektronen durch eine Elektronentemperatur beschreiben lässt, wird ein linearer Zusammenhang zwischen der potentiellen Energie der Projektilen und den berechneten Elektronentemperaturen vorgefunden. Aus der Steigung kann dann die Größe A_{Casc} gewonnen werden.
- Die Größe t_{Casc} wird (analog zur inneren Elektronenemission in Kapitel 3.2) mithilfe von MD-Simulationen abgeschätzt, in welchen für den Fall 5-keV $Ag^+ \rightarrow Ag$ ein hoher Anfangspeak im zeitlichen Verlauf der Elektronentemperatur T_e mit der Dauer t_{Casc} beobachtet wird. Diese Elektronentemperatur T_e ist (neben der Austrittsarbeit W) in Gleichung (6.4) der zentrale Parameter in der Bestimmung der Ausbeute der kinetischen Elektronenemission, welche laut Weidtmann für verschiedene Kristallstrukturen unterschiedliche Werte annehmen kann.

In der aus [104] entnommenen Abbildung 6.6 ist das Resultat einer solchen Rechnung für den Beschuss einer einkristallinen Silberoberfläche mit Silberatomen einer Energie von 5 keV dargestellt. Aufgetragen wurde die über 120 Einschläge gemittelte Elektronentemperatur am Einschlagort an der Oberfläche für verschiedene Kristallorientierungen. Wie zu erkennen ist, ist der berechnete Verlauf für die verschiedenen Kristallstrukturen (100), (110) und (111) verschieden.

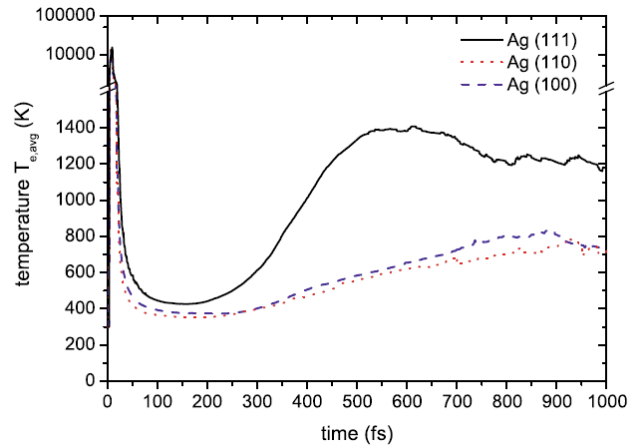


Abbildung 6.6: Zeitlicher Verlauf der über 120 Einschläge gemittelten Elektronentemperatur aus MD-Simulation für 5-keV $\text{Ag} \rightarrow \text{Ag}$ für verschiedene Kristallorientierungen. Bild entnommen aus [104].

Es fällt auf, dass die Reihenfolge der Elektronentemperaturen identisch zu dem Verlauf der in Abbildung 6.5 aufgeführten Elektronenemissionsausbeuten ist, sodass die (im Vergleich zu (100) und (110)) erhöhte Temperatur bei (111) ausreicht, um die große Austrittsarbeit zu überwinden. Für die (110) Orientierung ergibt sich der kleinste Wert für T_e , sodass zusammen mit dem Wert für W die niedrige Ausbeute verstanden werden kann.

Eine alternative Möglichkeit, die im Fall $\text{Ar}^+ \rightarrow \text{Ag}$ herrschende Elektronentemperatur zu bestimmen, stellt Gleichung (2.20) aus dem Sroubek'schen Hot-Spot Modells dar. Hierfür werden die Projektilgeschwindigkeit sowie der Wert für γ benötigt, welcher aus Tabelle 6.1 entnommen wird. Unter Verwendung von Gleichung (2.20) ist es so möglich, die Elektronentemperatur zu bestimmen, welche im Fall $\text{Ar}^+ \rightarrow \text{Ag}$ an der Oberfläche zum Zeitpunkt des Projektileinschlags herrscht.

Größe	E_p [eV]	W [eV]	γ [a. u.]	T_e [K]
Wert	5000	4.26	2.54	47100
Wert	5000	4.5	1.6	29700

Tabelle 6.4: Aus dem Hot-Spot Modell berechnete Elektronentemperaturen für 5-keV $\text{Ar} \rightarrow \text{Ag}_{\text{poly}}$ für den Fall $W = 4.26$ eV bzw. $W = 4.5$ eV.

Da sich die Austrittsarbeit laut Tabelle 6.3 je nach Präparation und Rauigkeit der Probe geringfügig ändern kann, sind in Tabelle 6.4 die berechneten Elektronentemperaturen für zwei Werte von W dargestellt. Da γ und W beide im Exponenten von Gleichung (6.2) stehen, führt eine veränderte Austrittsarbeit auch zu einem veränderten Wert von γ . Dies resultiert aufgrund von Gleichung (2.20) direkt in einem veränderten Wert von T_e . Wie zu erkennen ist, hängt der Absolutwert von T_e massiv vom Wert von W ab. Während W nur um 5 % zunimmt, wächst die verknüpfte Elektronentemperatur um 58 %.

- Die berechneten Werte für die Elektronentemperatur liegen mit $T_e = 47100$ K bzw. $T_e = 29700$ K in derselben Größenordnung wie die von Weidtmann et al. [104] errechneten Temperaturen für 5-keV Ag \rightarrow Ag in Abbildung 6.6.
- Einen ähnlichen Wert bekommen Kovacs et al. [54] für den Fall 720-eV Ar \rightarrow Cu. Die Elektronentemperatur ist hier mit knapp 26000 K nur halb so groß wie die in Tabelle 6.4, das Projektil hatte hier jedoch eine um Faktor sieben geringere kinetische Energie.

Da diese Elektronentemperaturen in der Nähe der Fermi-Temperatur ($T_F = 68000$ K) von Silber liegen, ist die Richardson-Dushman Gleichung (6.4) in ihrer ursprünglichen Form fehlerbehaftet. Wie bereits in Kapitel 3.4 demonstriert wurde, weicht das chemische Potential für hohen Elektronentemperaturen von der Fermi-Energie ab, woraus sich Korrekturen für die von den Elektronen erfahrene Austrittsarbeit ergeben [56, 57]. Für diese hohen Elektronentemperaturen wurde von Kovacs [54] eine neue Version der Richardson-Dushman Gleichung hergeleitet. Laut [54] gilt für die neue Ausbeute Γ_{KRD} folgende Abhängigkeit:

$$j_{KRD} = \frac{4\pi em}{h^3} (k_B T_e) \sum_{n=1}^{\infty} (-1)^{n-1} \frac{1}{n^2} \exp\left(-\frac{W + E_F - \mu(T_e)}{k_B T_e}\right) \quad (6.5)$$

$$\Gamma_{KRD} = \frac{A_{Casc} \cdot t_{Casc}}{e} \cdot j_{KRD} \quad (6.6)$$

Wird die externe Elektronenausbeute mithilfe von Gleichung (6.5) und (6.6) bis zur fünften Ordnung berechnet, so ergeben sich mit den gegebenen Parameter A_{Casc} und t_{Casc} die in Tabelle 6.5 aufgeführten Werte für die Ausbeute Γ_{KRD} :

Größe	E_p [eV]	W [eV]	T_e [K]	Γ_{KRD}
Wert	5000	4.26	47100	17.94
Wert	5000	4.5	29700	4.47

Tabelle 6.5: Elektronenausbeuten aus der modifizierten Richardson-Dushman Gleichung ((6.5)+(6.6)) für den Fall 5-keV Ar \rightarrow Ag

Der Unterschied von 5 % in der Austrittsarbeit und der damit verbundene Unterschied von 58 % in der Elektronentemperatur schlägt sich hier in einem Faktor 4 in den beiden berechneten Elektronenausbeuten $\Gamma_{KRD}^{(4.26 \text{ eV})}$ und $\Gamma_{KRD}^{(4.5 \text{ eV})}$ nieder. Während die Ausbeute $\Gamma_{KRD}^{(4.26 \text{ eV})} = 17.94$ einen um einen Faktor 50 größeren Wert als den gemessenen in Abbildung 6.5 aufweist, ergibt sich für $\Gamma_{KRD}^{(4.5 \text{ eV})} = 4.47$ ein Faktor von 17.

Die Diskussion der möglichen Fehlerquellen:

- Variation von A_{Casc} :
 - Laut Sroubek ist die Temperatur seines Hot-Spot Modells nur innerhalb eines kleinen Anregungsvolumens gültig dessen Volumen $V = (4/3)\pi r^3$ in etwa dieselbe Größe hat wie das Produkt aus Projektilwegstrecke pro Intervall $v \cdot \delta t$ und Streuquerschnitt d_e [45]. Werden beide Volumina gleichgesetzt, ergibt sich mit $d_e = 160$ a.u. und $\delta t = 50$ a.u. für ein 5-keV Ar^+ -Projektil ein Radius von ungefähr $r \approx 1.3$ nm. Daraus resultiert mit der Beziehung $A_{Casc} = \pi r^2$ ein aufgeheizter Fleck von $A_{Casc} = 5 \text{ nm}^2$ an der Oberfläche des Festkörpers, welcher knapp um den Faktor 20 größer ist als die von Kovacs angenommenen $A_{Casc} = (0.448)^{2/3} \text{ nm}^2$.
 - Laut Weidtmann [105] ist (in den in unserer Arbeitsgruppe durchgeführten MD-Simulationen für 5-keV $\text{Ag} \rightarrow \text{Ag}$) das Maximum des anfänglichen heißen Elektronentemperaturpeaks von mehreren 10^4 K (siehe Abbildung 6.6) nur auf eine kleine Fläche von rund $3 \times 3 \text{ \AA}^2$ lokalisiert, sodass die aufgeheizten Flächen in Kovacs' und insbesondere in Sroubeks Modell viel zu groß erscheinen. Durch eine Anpassung der Fläche A_{Casc} auf $3 \times 3 \text{ \AA}^2$ ergibt sich eine Ausbeute von $\Gamma_{KRD}^{(4.26 \text{ eV})} = 2.75$ bzw. $\Gamma_{KRD}^{(4.5 \text{ eV})} = 0.47$, was eine Verbesserung um knapp je eine Größenordnung darstellt.
- Variation von t_{Casc} :
 - Die Dauer der Emission t_{Casc} kann mittels der Intervalllänge δt abgeschätzt werden. Laut Sroubek [45] wird die Zeitspanne δt zum Durchfliegen eines Volumens auf 50 a.u. festgelegt, was einer Dauer von $\delta t = 1.2$ fs entspricht. Die Anzahl der beitragenden Volumina (siehe auch Abbildung 2.5) kann mithilfe von $\lambda_{esc}/(v \delta t)$ bestimmt werden, wobei λ_{esc} von Sroubek mit $\lambda_{esc} = 8$ a.u. $\approx 4 \text{ \AA}$ abgeschätzt wird. Die Gesamtzeit t_{Casc} , in welcher die räumlich und zeitlich lokalisierte Elektronentemperatur besteht, entspricht somit in etwa $t_{Casc} = \delta t \cdot \lambda_{esc}/(v_p \delta t)$ und führt zu einer effektiven Dauer der Emission von $t_{Casc} = 2.4$ fs, was knapp unter dem von Kovacs angenommen Wert von $t_{Casc} = 10$ fs liegt. Dies sorgt um eine Reduzierung der Ausbeute um einen Faktor 4.
- Eine weitere mögliche Fehlerquelle stellt die Berechnung der Elektronentemperatur durch Gleichung (2.17) dar, da diese auf der Annahme basiert, dass die Elektronentemperatur mithilfe der klassischen Wärmekapazität berechnet werden kann. Die Wärmekapazität für ein Fermigas weist eine lineare Temperaturabhängigkeit auf, was voraussichtlich auch zu anderen berechneten Elektronentemperaturen führen wird.

Als Fazit kann festgehalten werden, dass die experimentellen Daten erfolgreich mit dem skE-Modell beschrieben werden können und es darüber hinaus möglich ist, die am Einschlagort herrschende Elektronentemperatur an der Oberfläche zu bestimmen und für $W = 4.26$ eV einen Wert für die inverse Abklinglänge γ auszurechnen, welcher vergleichbar zu gemessenen Werten aus der Literatur ist.

Eine quantitative, eindeutige Bestimmung der Elektronenausbeute ist jedoch im Rahmen der Modellannahmen nur bedingt möglich, da nicht genug Informationen über das System vorliegen. Während eine Austrittsarbeit von $W = 4.5$ eV durch geschickte Variation von A_{Casc} (unter der Annahme von $3 \times 3 \text{ \AA}^2$) und t_{Casc} (im Bereich von 2.4-10 fs) zur Übereinstimmung mit dem Messwert gebracht werden kann, so ist dies für die um 5 % kleinere Austrittsarbeit $W = 4.26$ eV nicht mehr möglich.

Insbesondere der Wert des Streuquerschnitts d_e beruht auf empirischen Annahmen und bedarf einer sorgfältigeren Bestimmung wie z. B. durch den Partialwellenansatz von Juaristi [36]. Die richtige Wahl von A_{Casc} ist ebenfalls entscheidend, da diese sich von Kovacs [54], Sroubek [45] und Weidtmann [105] um einige Größenordnungen unterscheiden können. Darüber hinaus liegt eine starke Abhängigkeit vom Absolutwert von γ vor, da schon kleine Variationen des Wertes durch den linearen Zusammenhang zur Elektronentemperatur einen großen Einfluss auf die berechnete Ausbeute haben.

6.4 Beschusswinkelabhängigkeit der externen Elektronenemission

6.4.1 Polykristalline Proben

Wie bereits in Abbildung 6.1 zu erkennen ist, variieren die gemessenen Probenströme mit dem Beschusswinkel, was ein in der Literatur [37, 39-42] bereits bekanntes Phänomen ist. Die Änderung der Elektronenausbeute durch die Verkipfung der Projektiltrajektorie um den Winkel Θ bei gleichbleibender Energie ergibt allgemein folgenden Zusammenhang [37]:

$$\Gamma_{KEE} = \Gamma_{KEE}(0) \cdot \frac{1}{\cos^f(\Theta)} \quad (6.7)$$

$\Gamma_{KEE}(0)$ ist hier die Ausbeute bei senkrechtem Einfall und f ein Parameter, welcher die Abweichung des Experiments zum vereinfachten Modell (Gleichung (2.8)) wiedergibt. Dieser ist laut [37] definiert als:

$$f = 1 + \frac{\lambda A}{1 + \lambda A} \quad (6.8)$$

Die Größe A steht hier für $A = [1/N(0)](dN/dR)|_{R=0}$, was dem Gradienten der normierten Elektronendichte an der Oberfläche entspricht. Die Größe $N(R)$ entspricht hier der bereits in Kapitel 2.3.1 verwendeten Elektronendichte im Festkörper. In Abbildung 6.7 ist die Winkelabhängigkeit der externen Emission für den Beschuss einer polykristallinen Probe in Abhängigkeit des Beschusswinkels für zwei verschiedene Energien (5 keV und 10 keV) aufgetragen.

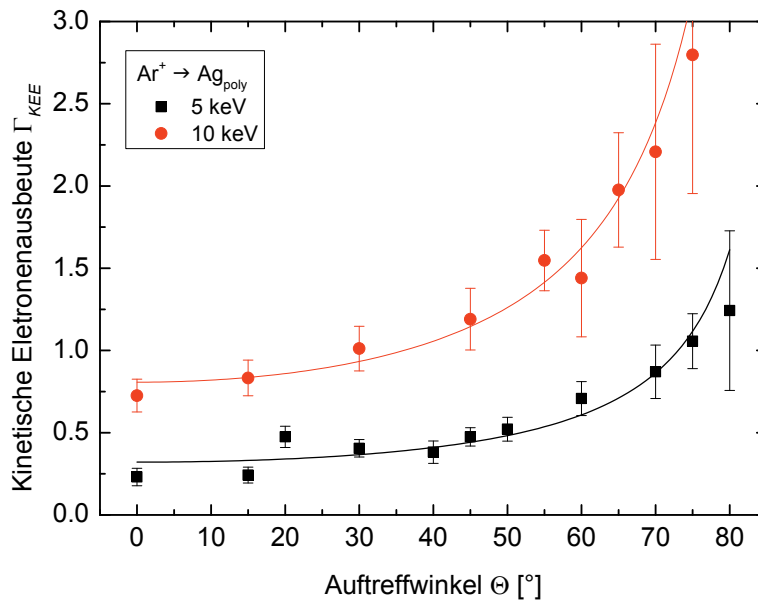


Abbildung 6.7: Beschusswinkelabhängigkeit der externen Emission. Die durchgezogenen Kurven stellen die auf Gleichung (6.7) Anpassungen dar, deren Parameter in Tabelle 6.6 zu finden sind.

Analog zu Messungen für die in [37] gezeigten Fälle $\text{Ar}^+ \rightarrow \text{Au}$ und $\text{Ar}^+ \rightarrow \text{Cu}$, wird hier für $\text{Ar}^+ \rightarrow \text{Ag}$ eine mit $1/\cos(\Theta)$ zunehmende Elektronenausbeute Γ_{KEE} für wachsenden Auftreffwinkel Θ beobachtet. Wird der Formalismus aus Gleichung (6.7) auf die Daten angewandt, so gibt es innerhalb der Fehlertoleranzen eine sehr gute Übereinstimmung zwischen der Kurvenanpassung und den gemessenen Datenpunkten. Die zugehörigen Werte für f sind (zusammen mit Werten von [37]) in Tabelle 6.6 aufgeführt.

Es ist zu erkennen, dass in diesem Fall die Werte für f im Rahmen der Messgenauigkeit im Bereich von 1 liegen, was darauf schließen lässt, dass hier die Anregung der Elektronen durch das Projektil dominiert wird und die Recoils einen geringeren Beitrag leisten. Dies ist insofern erklärbar, als das das Projektil die größte kinetische Energie trägt und daher die hochangeregten Elektronen, welche für die ballistische Emission wichtig sind, vom Projektil angeregt werden. Dieses Verhalten wird jedoch nicht im vergleichbaren Fall beim Be-

schuss von Kupfer und Gold mit 10-keV Ar^+ -Projektilen beobachtet, sodass es andere Effekte geben muss.

Projektil	Energie	Target	f	Δf
Ar^+	5 keV	Ag	0.92	13 %
Ar^+	10 keV	Ag	1.01	7 %
Ar^+ [37]	10 keV	Cu	0.83	5 %
Ar^+ [37]	10 keV	Au	0.63	5 %
Xe^+ [37]	5 keV	Cu	0.68	5 %
Xe^+ [37]	10 keV	Cu	0.95	5 %
Xe^+ [37]	10 keV	Au	0.67	5 %

Tabelle 6.6: Parameter für die Beschusswinkelabhängigkeit der vorliegenden Daten ($\text{Ar}^+ \rightarrow \text{Ag}$) sowie Literaturwerte [37]

Im Allgemeinen lassen sich laut Ferrón et al. [37] drei empirische Grundregeln für f ableiten:

1. f steigt mit zunehmender Primärenergie des Projektils an.
2. Bei gleicher Primärenergie fällt f mit zunehmender Masse des Projektils.
3. f fällt mit wachsender Kernladung der Targetatome.

Wie in Tabelle 6.6 zu erkennen, erfüllen die präsentierten Daten die erste empirische Voraussage. Die zweite Regel ist auf unsere Daten nicht anwendbar, da nur Ar^+ als Projektil verwendet wurde. Auch mit der dritten Regel ergibt sich keine Übereinstimmung. Laut dieser Voraussage müsste unser Wert für 10-keV Ar^+ zwischen $f = 0.83$ (Kupfer) und $f = 0.63$ (Gold) liegen, was mit $f = 1.01$ (Silber) allerdings nicht der Fall ist. Eine mögliche Ursache dafür stellt der in Gleichung (4.3) auftretende Term für die Ausbeute der Potentialelektronenemission dar, welche von Kovacs basierend auf experimentellen Daten als $\Gamma_{PEE} = 0.06$ abgeschätzt wurde [17]. Wird Γ_{PEE} geringfügig variiert (z. B. in der zweiten Nachkommastelle), so sorgt dies für starke Variationen bei dem Parameter f (in der ersten Nachkommastelle). Da Γ_{PEE} zudem stark von der Austrittsarbeit abhängt [106] und diese wiederum von der Sauberkeit und Ebenheit der Oberfläche [86], können kleine Änderungen in der Austrittsarbeit somit großen Einfluss auf die Ausbeute und damit auf den Absolutwert von f haben. Darüber hinaus skalieren (in Gleichung (6.5)) die kinetischen Elektronenausbeuten ins Vakuum mit dem Wert der Austrittsarbeit, welcher sich (wie in Abbildung 5.5 gezeigt) mit der Oberflächenbeschaffenheit der Probe ändern kann. Es ist also davon auszugehen, dass der Absolutwert der gemessenen Ausbeute indirekt einen maßgeblichen Einfluss auf den Wert von f hat.

Die Tatsache, dass der Exponent f des cos-Terms in Gleichung (6.7) kleiner als eins ist, wird in [37] der Tatsache zugeschrieben, dass das Projektil im Experiment innerhalb der Escape Depth abbremst und daher weniger Elektronen erzeugt, als in der theoretischen Formulierung in Gleichung (2.8) erwartet werden würde.

Einen analogen Zusammenhang wie in Gleichung (6.7) liefert das bereits in Kapitel 2.3.3 vorgestellte Sroubek'sche Hot-Spot Modell, in welchem die elektronische Anregung durch ein elektronentemperaturabhängiges Sub-Threshold Multi-Elektronen Modell beschrieben wird. Auch hier folgt die Beschusswinkelabhängigkeit regimeübergreifend (im Rahmen der Annahmen) einem $1/\cos(\Theta)$ –Verlauf (siehe Gleichung (2.21)), sodass die Form der Winkelabhängigkeit der externen Elektronenausbeute gleichermaßen mit dem Modell der ballistischen Elektronen, als auch mit dem Sub-Threshold Formalismus beschrieben werden kann. In diesem Formalismus (Gleichung (2.21)) steckt jedoch durch den Faktor $\lambda_{esc}/(v_p \delta l)$ ebenfalls die idealisierte Annahme, dass das Projektil innerhalb der Escape Depth keine Geschwindigkeit einbüßt.

6.4.2 Einkristalline Proben

Eine weitere Fragestellung ergibt sich aus dem Einfluss der Kristallstruktur auf die Form der Beschusswinkelabhängigkeit der externen Ausbeute. In einem geordneten Kristall sollte es aufgrund der Gitterstruktur Einschusswinkel geben, bei denen die Projektilen ihre Energie an der Oberfläche deponieren, und welche, in denen sie aufgrund des „Channeling“ [107] ihre Energie erst tiefer im Festkörper abgeben. Die Ergebnisse für den Beschuss von (100)-, (110)- und (111)-Einkristallen durch Argon-Projektilen mit einer festen Beschussenergie von 5 keV werden in Abbildung 6.8 vorgestellt.

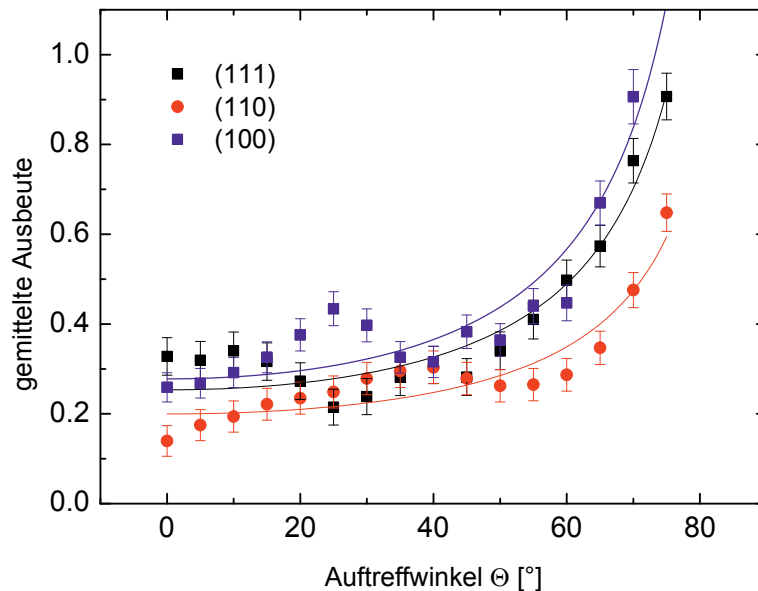


Abbildung 6.8: Beschusswinkelabhängigkeit für den Beschuss von Silber-Einkristallen mit 5-keV Ar^+ Projektilen. Die Ergebnisse (Punkte) gehorchen einer $1/\cos$ -Abhängigkeit (Kurven). Die Daten zeigen durch die Welligkeit eine klare Abhängigkeit der Ausbeute von der jeweiligen Kristallstruktur.

Auch hier ist wieder die bereits bei polykristallinen Proben (Abbildung 6.7) beobachtete $1/\cos(\Theta)$ –Abhängigkeit aus Gleichung (6.7) zu sehen, sodass die Daten grob mit Gleichung (6.7) angenähert werden können. Die zu den Kurven in Abbildung 6.8 gehörenden Werte für f sind in Tabelle 6.7 aufgeführt.

Struktur	f	Δf
100	1.03	8,7 %
110	0.81	8 %
111	0.95	8 %

Tabelle 6.7: Werte der Exponenten für die Kurven in Abbildung 6.8. Der Fehler Δf stellt die mittlere Quadratabweichung bei der Anpassung von Gleichung (6.7) dar.

Es ist ersichtlich, dass die Werte für den Exponenten f für verschiedene Kristallstrukturen unterschiedliche Werte annehmen. Ähnlich wie bei den polykristallinen Proben skaliert f mit den Absolutwerten der jeweiligen (mittleren) Ausbeute. Diese können von Abbildung 6.5 abweichen, da der $1/\cos(\Theta)$ –Verlauf der Ausbeute durch eine Oszillation überlagert wird, welche die Ausbeute je nach Auftreffwinkel erhöht oder vermindert. Diese Oszillation des Messsignals ist eine Signatur der Kristallstruktur des beschossenen Kristalls und gibt Aufschluss auf mögliche Channeling-Richtungen in den beschossenen Kristallen [108]. Eine Mulde in der Ausbeute könnte hier eine Channeling-Richtung implizieren, da in diesem Fall das Projektil seine Energie nicht hauptsächlich an der Oberfläche verteilt, sondern sie weiter in den Festkörper trägt.

Diese polarwinkelabhängige Oszillation der Elektronenausbeute ist bereits aus anderen Veröffentlichungen [109, 110] bekannt, in welchen ebenfalls eine Oszillation der Elektronenausbeuten unter verschiedenen Beschusswinkeln beobachtet wurde. Da in dieser Arbeit die Abhängigkeit der Elektronenausbeute von der Kristallstruktur und das allgemeine beschusswinkelabhängige Verhalten der Elektronenausbeute im Fokus steht, gibt es (über mehrere Messreihen gemittelte) Messungen für eine Primärenergie und einen festen Azimutwinkel. Der Einfluss des Azimutwinkels und der Primärenergie auf die Oszillation der Elektronenausbeute wird an dieser Stelle anhand von Messungen aus der Literatur genauer diskutiert.

Im linken Teil von Abbildung 6.9 sind Literaturdaten [110] für die Elektronenausbeute im Fall 30-keV $\text{Ar}^+ \rightarrow \text{Cu}(110)$ in Abhängigkeit von Polar- (hier φ) und Azimutwinkel (hier β) aufgetragen. Wie zu erkennen ist, ändert sich der Absolutwert der Ausbeute im untersuchten Bereich gemächlich mit dem Azimutwinkel, wobei die absoluten Positionen der Minima und Maxima auf bestimmte Azimutwinkel festgelegt sind. Da es sich beim untersuchten Target um Kupfer handelt, welches wie Silber eine fcc-Gitterstruktur aufweist, können die Daten auf unser System übertragen werden. Im Gegensatz zu unserem System

(5-keV $\text{Ar}^+ \rightarrow \text{Ag}$) wurden hier allerdings Primärprojekte mit einer Energie von 30 keV verwendet, wodurch die Oszillationen stärker ausgeprägt sind.

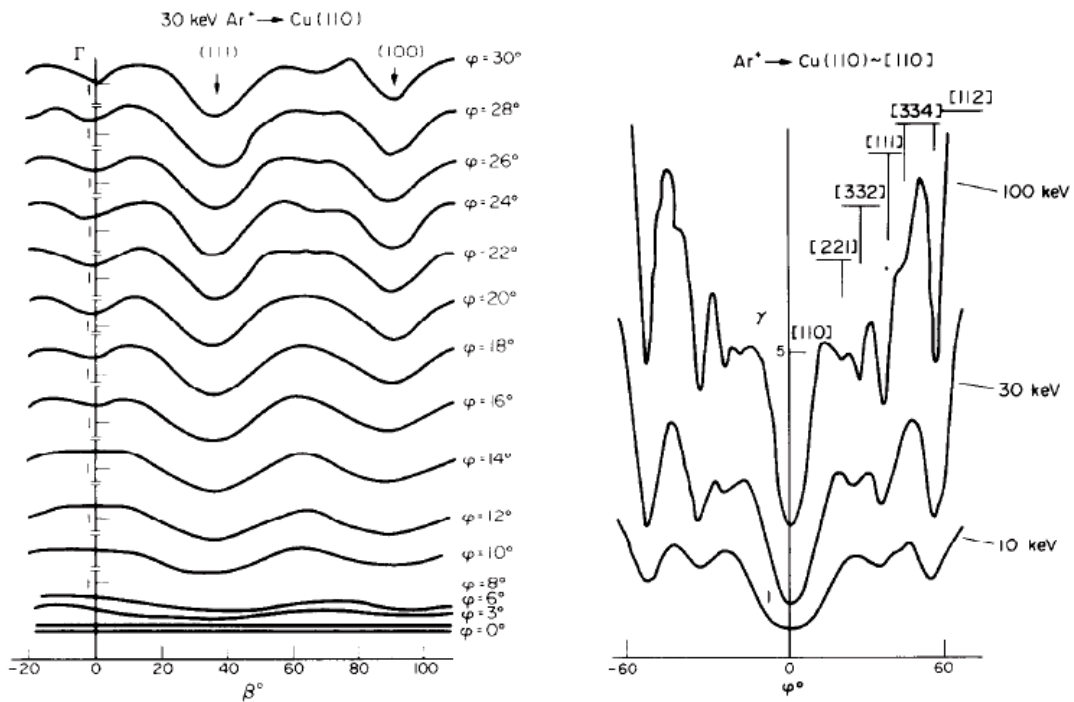


Abbildung 6.9: Veränderung der Kristallsignatur in der Winkelabhängigkeit vom Polarwinkel φ der externen Elektronenausbeute durch (links) Variation des Azimutwinkels β und/oder (rechts) durch Erhöhung der Projektilenergie. Bilder entnommen aus [110].

Im rechten Teil von Abbildung 6.9 ist zu erkennen, dass sich bei der Erhöhung der Primärenergie nicht nur der Absolutwert der Ausbeute ändert. Zusätzlich vergrößern sich auch die relativen Schwankungen in der Oszillation auf dem Signal, d. h. die Signalmodulation wird deutlich verstärkt. Dies kommt daher, dass bei einer größeren Primärenergie die Primärionen aufgrund des höheren Impulses eine größere Channeling-Wahrscheinlichkeit aufweisen als bei niedrigen Energien. Wenn ein Projektil in den Kristall in einer Channeling-Richtung eindringt, so fliegt es fast ohne Stöße durch den Kristall, wodurch die Anregungsenergie tief im Kristallinneren deponiert wird und aufgrund von Transporteffekten der Absolutwert der Elektronenemission ins Vakuum zurückgeht. Wird die Channeling-Richtung hingegen verfehlt, kommt es zu Stoßkaskaden in der Nähe der Oberflächen, so dass die Anregung näher an der Oberfläche erfolgt und die externe Elektronenausbeute ansteigt. Eine Erhöhung der Primärenergie des Projektils hat zur Folge, dass der Ablenkwinkel bei der Streuung an einem Festkörperatom kleiner wird. Dies erhöht die Wahrscheinlichkeit, dass das Projektil einen „Channeling-Kanal“ betreten kann.

Die Signalmodulationen haben deutliche Auswirkungen auf den Absolutwert der gemessenen Ausbeuten. Wie Abbildung 6.8 zu entnehmen ist, sorgen die Oszillationen auf der gemessenen Elektronenausbeute dafür, dass die Reihenfolge, welche Ausbeute am größten ist, mit wachsendem Polarwinkel variiert. Somit muss beim Vergleich der gemessenen

Ausbeuten (wie in Abbildung 6.5) für verschiedene Kristallstrukturen bei festen Primärenergien berücksichtigt werden, unter welchen Winkeln der Kristall beschossen wurde.

Die Messbarkeit der vorgestellten Abhängigkeiten von Azimutwinkel und Primärenergie hängen zudem beide von den experimentellen Umständen ab. Wie bereits in Kapitel 5 ausgeführt wurde, wurden die Einkristalle in dieser Arbeit keinem Sputter & Anneal – Prozess unterzogen, sondern wurden mit 5-keV Argon-Ionen unter streifendem Einfall gesäubert. Dies hat (verbunden mit der Grundrauhigkeit) zur Folge, dass die hier benutzten Kristalle bei Beschuss keine perfekte Einkristallstruktur aufweisen. Dies wird anhand der LEED-Bilder des Ag(100)-Kristalls (Abbildung 5.6) belegt, welche nur unscharfe Reflexe zeigen. Wie darüber hinaus ausgeführt wurde, können sich durch den Beschuss laut Ogilvie [82] kleine Überstrukturen auf der Kristalloberfläche bilden, welche eine leicht verkippte Kristallstruktur aufweisen. Diese führen beim Beschuss je nach Auftreffpunkt des Projektils zu einem leicht geänderten Winkel Θ , sodass es eine andere Oszillation der Ausbeute gibt.

6.5 Fazit

In diesem Kapitel der Arbeit wurde die Energie- und Beschusswinkelabhängigkeit der externen Elektronenemission gemessen und mit Literaturdaten verglichen. Hierbei stellte sich heraus, dass die Messdaten zu der Energie- als auch der Beschusswinkelabhängigkeit der externen Elektronenemission (auch für verschiedene Kristallstrukturen) mit Literaturdaten im Einklang sind und beide Phänomene mit dem klassischen als auch mit dem Sub-Threshold Modell sowohl beschrieben als auch verstanden werden können.

Beim Sub-Threshold Modell konnte zudem gezeigt werden, dass es mithilfe des Sroubek'schen Hot-Spot Modells möglich ist, die Elektronentemperaturen im Einschlaggebiet zu approximieren und mithilfe eines modifizierten Richardson-Dushman Ansatzes die Elektronenausbeute zu berechnen (Kapitel 6.3). Als Ergebnis konnte festgehalten werden, dass es innerhalb der groben Modellannahmen möglich ist, Elektronentemperaturen zu bestimmen, welche vergleichbar zu Literaturwerten für ähnliche Systeme sind. Diese hängen jedoch dramatisch von dem Absolutwert der Austrittsarbeit ab, sodass die so berechneten Elektronenausbeuten nur durch geschickte Wahl der Anpassparameter mit den gemessenen Ausbeuten in Einklang gebracht werden können.

Das klare $1/\cos$ -Verhalten in der Beschusswinkelabhängigkeit der externen Emission (Kapitel 6.4) deutet an, dass in unserem Fall die Projektil die elektronische Anregung dominieren und der Beitrag der Recoils zu hochangeregten Elektronen vernachlässigbar scheint. Es konnte darüber hinaus für einige exemplarische Messreihen demonstriert werden, dass trotz der nicht-optimalen experimentellen Bedingungen ein Wechsel der Kristallstruktur zu

den in der Literatur bekannten Oszillationen auf dem $1/\cos$ -Verhalten führt, welche explizit von der jeweiligen Gitterstruktur abhängen und deren Minima Channeling-Richtungen der Projektile kennzeichnen.

7 Experimentelle Durchführung (innere Emission)

7.1	Messaufbau	87
7.2	Verwendete Messtechnik	89
7.2.1	Datenakquise	90
7.2.2	Gepulste Ionenquelle.....	91
7.3	Auswertung der Messsignale	93
7.3.1	Messung der Beschusswinkelabhängigkeit.....	94
7.3.2	Messung der Biasspannungsabhängigkeit.....	95
7.4	Schichtdickenabtrag	97

7.1 Messaufbau

Die im Rahmen dieser Arbeit beschossenen MIM-Systeme wurden uns zunächst durch eine Kooperation mit der Arbeitsgruppe von Prof. Hasselbrink im Rahmen des Sonderforschungsbereiches 616 zur Verfügung gestellt und ab 2010 selbstständig in den Räumen von Prof. Hasselbrink hergestellt und charakterisiert. Genaue Details hierzu sind im Anhang A.1 dieser Arbeit zu finden.

Zur Messung der inneren Elektronenausbeute wurde der in Kapitel 4.5 vorgestellte Probenhalter unverändert übernommen. Auf diesem ist es durch die Verwendung von drei Klammern möglich, über die beiden äußeren Klammern mittels Leitsilberbahnen einen leitenden Kontakt zur Silberschicht herzustellen, während die mittlere Klammer die Aluminiumschicht kontaktiert.

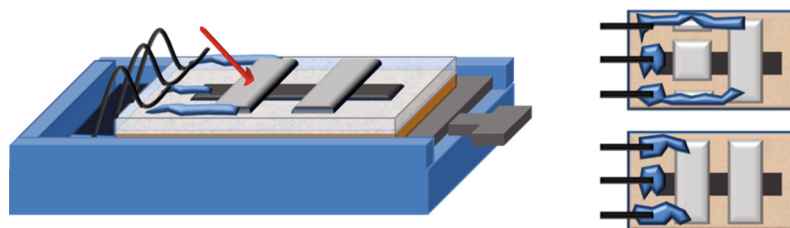


Abbildung 7.1: Probenhalter in den Messungen zur inneren Emission. Links ist ein eingeschobener MIM zu sehen, welcher mit Projektilen (rot) unter variablem Beschusswinkel beschossen werden kann. Rechts ist die Kontaktierung für beide auf dem Probenträger aufgetragenen MIM-Systeme abgebildet.

Da jeder Probenträger über zwei aufgedampfte Silberschichten verfügt, gibt es pro Probenträger somit zwei voneinander unabhängige MIM-Systeme, welche nacheinander kontaktiert werden können (siehe auch Abbildung 7.1 rechts oben und rechts unten). Durch eine Verschiebung des Probenhalters entlang der x-Achse war es bei festmontierter Ionenkano-

ne so möglich, zwischen beiden MIM-Systemen als Beschusstarget zu wählen. Wenn die Argon-Ionen auf die AlO_x -Schicht treffen, kann sich diese aufladen und so die Funktionalität des MIM-Systems verändern. Um dem vorzubeugen, ist es möglich, den Ionenstrahl mit einer unter einem festen Winkel von 45° auf den Probenhalter orientierten CCD-Kamera auf den Probenhalter auszurichten, sodass der Ionenstrahl nach der Freigabe direkt auf die Silberschicht trifft. Hierzu wird der Strahl zunächst unter Zuhilfenahme des Faraday-Cups lokalisiert und der Beschussfleck auf dem Monitor der Kamera markiert. Danach wird der Probenträger entlang der x-Achse relativ zur Kameraposition verschoben, bis die Markierung der voraussichtlichen Strahlposition auf dem Monitor deckungsgleich mit einer der beiden Silberschichten ist und erst danach wird der Strahl aktiviert.

In Abbildung 7.2 ist das Grundschemata einer MIM-Messung skizziert. Der im Beschuss sensitive Bereich, in welchem eine $\text{Ag}|\text{AlO}_x|\text{Al}$ -Struktur vorliegt, wird als *aktive Fläche* bezeichnet und ist rot hervorgehoben.

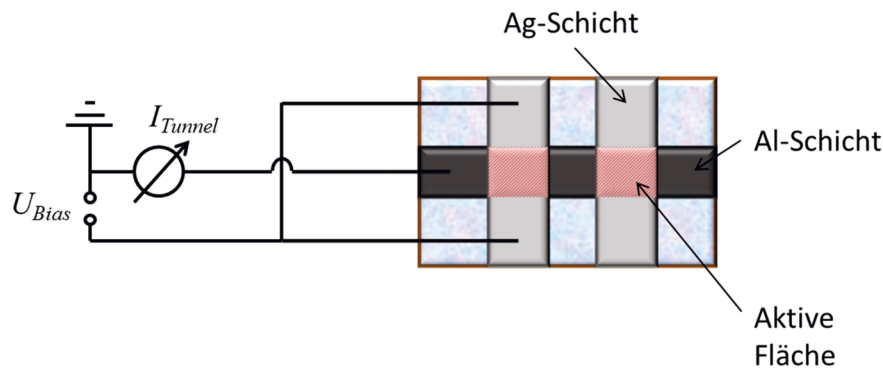


Abbildung 7.2: Schematischer Aufbau eines Schaltplans zu einer MIM-Messung.

Die räumliche Ausdehnung der aktiven Fläche wird durch die Breite der Aluminium- und der Silberschicht festgelegt, welche üblicherweise 3-5 mm (Al) und 5 mm (Ag) ist.

Zentrale Messgröße der Experimente zur inneren Emission ist die sog. innere Elektronenausbeute Γ_{IEE} , welche sich aus dem Verhältnis des gemessenen Tunnelstroms I_{Tunnel} und dem Primärionenstrom I_{Ion} ergibt.

$$\Gamma_{IEE} = \frac{I_{Tunnel}}{I_{Ion}} \quad (7.1)$$

Ersterer wird gemäß Abbildung 7.2 als Tunnelstrom zwischen Silber- und Aluminiumschicht gemessen, während Letzterer über den auf dem Probenhalter montierten Faraday-Cup ermittelt wird.

7.2 Verwendete Messtechnik

Um eine genaue Messung der inneren Ausbeute zu ermöglichen, ist es nötig, den Elektronenstrom durch die Oxidbarriere mit größtmöglicher Sorgfalt zu messen und so das Signal/Rauschverhältnis zu minimieren. Ferner ist es wichtig, die Biasspannung U_{Bias} (siehe auch Abbildung 3.4) zwischen der oberen Silber- und der unteren Aluminiumschicht möglichst exakt einstellen zu können, da es sonst durch zeitliche Instabilitäten in U_{Bias} zu kapazitiven Leckströmen $I_{Bias} = C \cdot dU_{Bias}/dt$ kommen kann. Darüber hinaus ist es möglich, über das Anlegen einer von null verschiedenen Biasspannung (wie bereits in Kapitel 3.3 ausgeführt) direkten Einfluss auf die Form der internen Tunnelbarriere zu nehmen, sodass die Beiträge von Elektronen und Löchern im gemessenen Tunnelstrom gezielt variiert werden können.

Die an der Messung der inneren Emission in Metall-Isolator-Metall-Systemen verwendeten Messgeräte sind nachfolgend in Abbildung 7.3 vorgestellt. Diese sind:

- Grüner Kasten (Kapitel 7.2.1) : Datenakquise
- Roter Kasten (Kapitel 7.2.2): Gepulste Ionenquelle
- Blauer Kasten (Kapitel 7.3): Auswerten der Messdaten

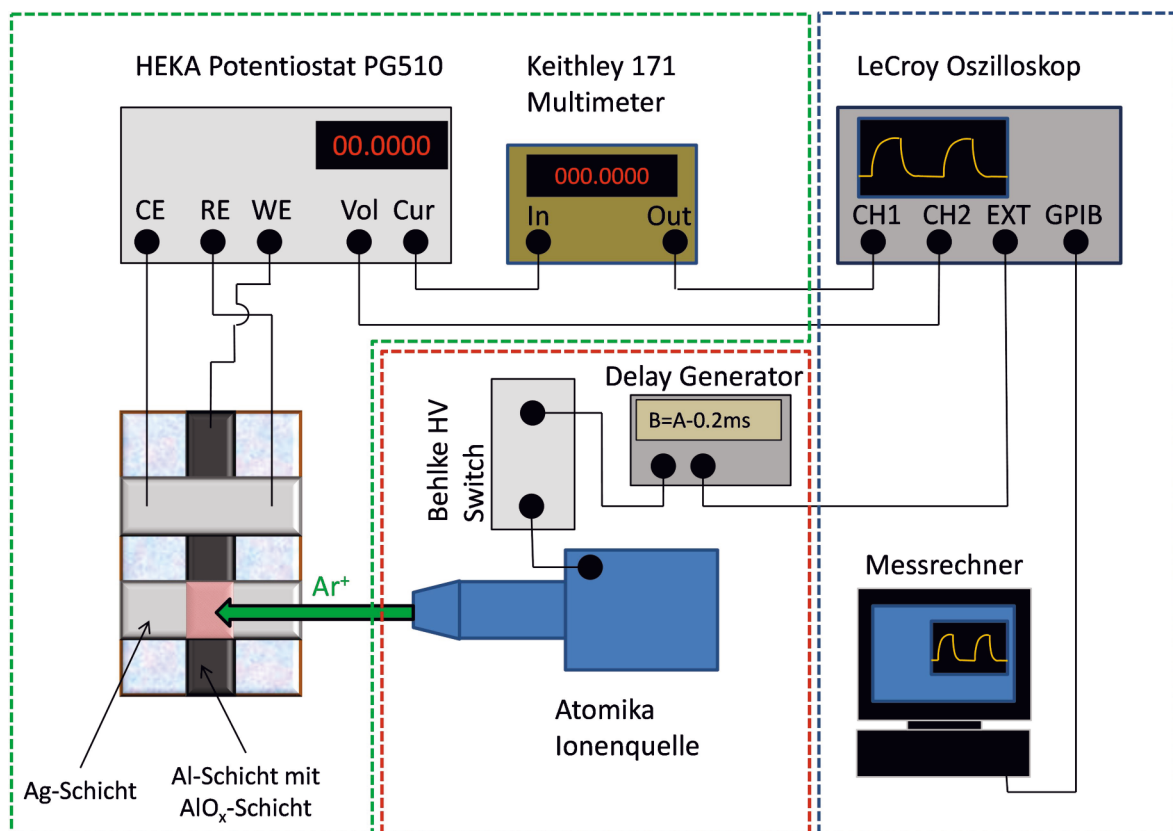


Abbildung 7.3: In Experimenten zur inneren Emission verwendete Geräte. Die an der Erzeugung des Ionenstrahls verwendeten Geräte sind in einem roten Kasten zusammengefasst, wohingegen die Geräte zur Bestimmung des Probenstroms im grünen Kasten zu finden sind. Die Analyse der Daten ist im blauen Kasten dargestellt.

7.2.1 Datenakquise

Das zentrale Gerät zur Messung der (biasspannungsabhängigen) inneren Tunnelströme durch die Oxidschicht ist der Potentiostat PG510, welcher beispielsweise auch in der Elektrochemie für die Untersuchung elektrochemischer Zellen oder zur Herstellung von MIM-Systemen (siehe Anhang A.1) verwendet werden kann. Der PG510 verfügt hierfür über eine Drei-Elektroden Anordnung, welche in Abbildung 7.4 schematisch dargestellt ist:

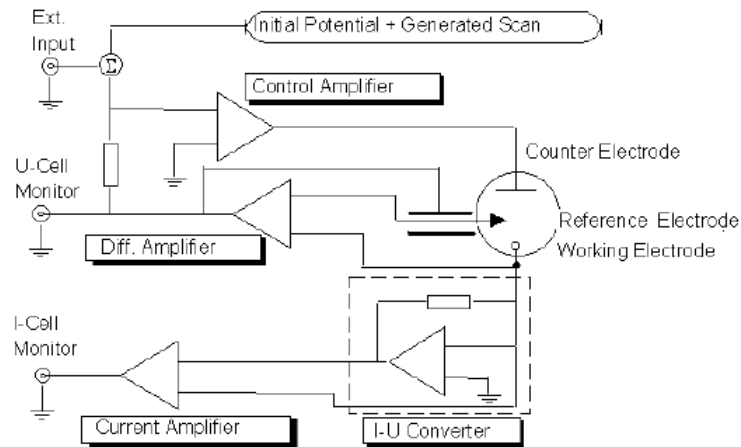


Abbildung 7.4: Schematischer Schaltplan eines HEKA Potentiostaten PG510. Quelle ⁷: Handbuch PG510

Die zentrale Funktion des Potentiostaten besteht darin, eine feste Potentialdifferenz zwischen der Reference- und der Working-Elektrode vorzugeben, und diese während eines Messvorgangs zu überwachen bzw. nachzuregeln. Das Einstellen der Potentialdifferenz erfolgt hier über einen differentiellen Operationsverstärker, wobei die Working-Elektrode auf Erde und die Reference-Elektrode auf dem gewünschten Potential liegt. Letzteres kann über den Ausgang *U-Cell Monitor* ausgelesen und auf einem Oszilloskop betrachtet werden. Kommt es während eines Messvorgangs durch externe Einflüsse zu einer Veränderung dieser Potentialdifferenz, so wird diese durch die Injektion eines Stroms zwischen der Counter- und der Working-Elektrode wieder auf den ursprünglichen Stand zurückgeregelt. Die Reference-Elektrode ist hier sehr hochohmig, sodass über diese kein Strom abfließt. Da die auftretenden Ströme sehr gering sein können, besteht mithilfe eines in Reihe geschalteten I-U-Konverters die Möglichkeit, diese um einen Faktor von bis zu 10^7 V/A zu verstärken. Das gemessene Stromsignal kann danach bei Bedarf durch einen zuschaltbaren Stromfilter bzw. einer Bandbreitenbegrenzung geglättet und über den *I-Cell Monitor* Ausgang ausgelesen werden. Für die im Rahmen dieser Arbeit durchgeführten Experimente wurden die Counter- und die Reference-Elektrode über die Silberschicht kurzgeschlossen, während die Aluminiumschicht durch die Working-Elektrode kontaktiert wurde (siehe

⁷ Quelle: Handbuch PG510 Potentiostat 2.0 (http://www.heka.com/download/manuals/m_pg500.pdf)

auch Abbildung 7.3). Die einstellbare Potentialdifferenz entspricht somit der in unseren Experimenten relevanten Biasspannung U_{Bias} zwischen der Silber- und der Aluminiumschicht, während das an der Working-Elektrode gemessene Stromsignal dem Strom angeregter Ladungsträger durch das Aluminiumoxid I_{Tunnel} darstellt.

Eine weitere Methode, das Stromsignal zu verstärken, stellt das hinter dem Potentiostaten in Reihe geschaltete Keithley 171 Digital Multimeter dar. Dieses Multimeter muss hierfür im DC-Modus betrieben werden und erlaubt so mittels eines integrierten Chopper Verstärkers eine zusätzliche Verstärkung des vom Potentiostaten ausgegebenen Stromsignals um einen Faktor von bis zu 10^2 . Neben der zusätzlichen Verstärkung des Stromsignals wird als weiterer positiver Nebeneffekt das (durch Widerstände und Transistoren im Messaufbau erzeugte) 1/f-Rauschen auf dem Stromsignal durch die kurzzeitige Verschiebung in einen höheren Frequenzbereich dauerhaft verringert.

Die im Rahmen der hier durchgeführten Messungen benutzen/eingestellten Betriebsparameter sind:

- Potentiostat: Bandweitenbegrenzung auf 100 Hz; Stromfilter auf MAX und Current Range auf 1 μ A
- Keithley 171: Verstärkung des Inputsignals um Faktor 10

Das gemessene Tunnelsignal I_{Tunnel} konnte so um einen Gesamtfaktor von 10^8 V/A verstärkt werden. Ein Nebeneffekt der benutzen Filter liegt darin, dass die Anstiegsflanken der Messsignale abgerundet wurden, worauf im nachfolgenden Abschnitt weiter eingegangen werden soll.

7.2.2 Gepulste Ionenquelle

Im Gegensatz zu den Messungen zur externen Emission wurde die Ionenquelle in den Messungen zur inneren Emission in einem gepulsten Modus betrieben. Dazu wurden die spannungsführenden Zuleitungen zum Wienfilter aufgetrennt und ein Hochspannungsschalter des Typs *Behlke Push-Pull* zwischengeschaltet. Dieser Schalter wurde von einem TTL Delay-Generator angesteuert, an welchem die Pulslängen und die Repititionsrate eingestellt werden konnten.

Einer der Gründe, warum sich (anders als bei den Experimenten zur externen Elektronenemission) für einen gepulsten Betrieb entschieden wurde, ist, dass es so eine geringere Bestrahlungsdauer der Silberschicht mit Ionen gibt. Denn obwohl der Fokus dieser Arbeit auf der beschussinduzierten *elektronischen Anregung* liegt, ist in dem von uns untersuchten Projektil-Energiebereich der Energieverlust aufgrund von Stößen mit Festkörperatomen der stärkere Prozess (Kapitel 2.1). Durch Zerstäubungsprozesse kommt es so mit steigen-

der Beschussdauer zu einem kontinuierlichen Abtrag des Silberfilms, welcher sich laut Meyer [8] exponentiell auf das gemessene Tunnelsignal der Elektronen auswirkt. Daher muss für eine korrekte Messung der Beschusswinkelabhängigkeit sichergestellt werden, dass die Schichtdicke während einer Messreihe nahezu unverändert bleibt.

Um dies zu gewährleisten, muss die Pulsdauer t_{Puls} des Argon-Ionenstrahls so gering wie möglich sein. Der entscheidende Faktor für die Pulsdauer sind die im Experiment vorkommenden Anstiegsflanken der Strompulse, bis diese ihren Sättigungswert erreichen. Die hier benutzten $\text{Ag|AlO}_x\text{|Al}$ -MIM-Systeme besaßen laut Abbildung A.4 eine RC-Zeit von $R_{Oxid} \cdot C_{Oxid} \approx 15\Omega \cdot 300\text{ nF} \approx 4.5\text{ }\mu\text{s}$, sodass dies kein limitierender Faktor sind. Einen großen Einfluss hat hingegen die kombinierte Nutzung von Potentiostat (zur Signalakquise) und Keithley 171 (zur Nachverstärkung), welche in Summe zu einer RC-Zeit von $\tau = 37.6\text{ s}$ führen, sodass die Strompulse erst nach einer Anstiegszeit von bis zu 180 ms (siehe linker Teil von Abbildung 7.5) in Sättigung gehen. Für die Messungen wurden daher die Pulsdauern konstant auf $t_{Puls} = 200\text{ ms}$ bei einer Repetitionsrate von 1-2 Hz eingestellt.

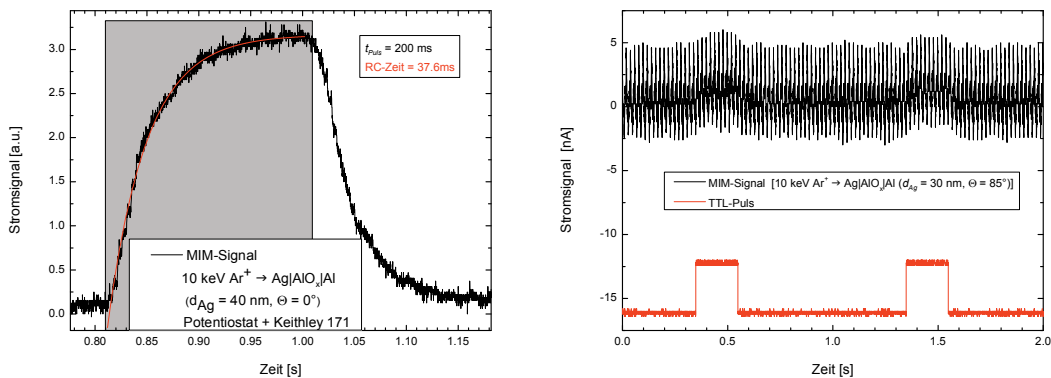


Abbildung 7.5: (Links) Anpassung der Pulsdauer an die messtechnisch bedingte RC-Zeit des Stromsignals. (Recht) Identifikation eines kleinen Stromsignals dank eingeblendetem TTL-Puls. Das Messsignal wird hier von einem Netzbrummen überlagert.

Ein weiterer Vorteil des gepulsten Betriebes liegt darin, dass sehr kleine Messsignale einfacher zu identifizieren sind. Insbesondere bei Messungen unter streifendem Einfall wurden bei der Messung des Stromsignals häufig geringe Ströme mit einem schlechten Signal/Rausch-Verhältnis beobachtet, sodass das Stromsignal nur schwer aufzulösen war (siehe Abbildung 7.5 rechts)

Die zweite Möglichkeit, den Abtrag der Probe zu minimieren und so eine höhere Lebensdauer des MIM-Systems zu gewährleisten, besteht in der Reduktion des Probenstroms. Da der Probenstrom je nach Beschusswinkel und Primärenergie im Bereich weniger nA liegen konnte, war es nicht möglich, diese direkt am Oszilloskop (mit einem Eingangsverstärker von $1\text{ M}\Omega\text{ V/A}$) zu messen. Stattdessen wurde ein in dieser Arbeitsgruppe entwickelter und

bereits von Meyer [7] benutzter I-U-Konverter mit einer Verstärkung von 10^7 V/A benutzt. Ein Schaltplan dieses Verstärkers ist in Abbildung 7.6 abgebildet.

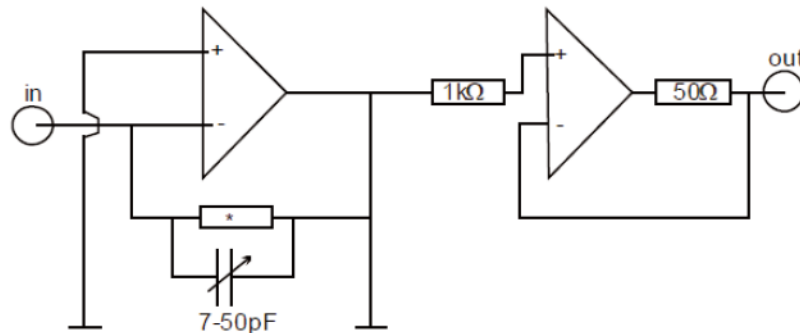


Abbildung 7.6: Eigenbau Strom-Spannungs-Wandler (Schema entnommen aus [111]). Der Widerstand, welcher mit einem * gekennzeichnet ist, beträgt $10\text{M}\Omega$, was einer Verstärkung von 10^7 V/A entspricht.

Durch weitere zuschaltbare Widerstände war es zudem möglich, die Verstärkung von 10^7 V/A um einen Faktor 40 zu erhöhen, sodass die, im Zuge der Messung zur Beschusswinkelabhängigkeit der inneren Emission, im Faraday-Cup gemessenen Stromsignale um einen Gesamtfaktor von $4 \cdot 10^8$ V/A verstärkt wurden.

Die wesentliche Limitierung bei der Reduktion des Primärionenstroms stellt der zu messende innere Tunnelstrom durch das Oxidinterface des MIM-Systems dar. In den Messungen zur Winkelabhängigkeit der Ausbeute war es möglich, Tunnelsignale im Bereich $I_{\text{Tunnel}} \approx 10^2$ pA aufzulösen, wozu Primärionenströme von $I_{\text{FC}} \approx 1\text{-}10$ nA benötigt wurden. Wie bereits von Meyer gezeigt wurde, ist es darüber hinaus theoretisch auch möglich, Tunnelstromsignale mit $I_{\text{Tunnel}} \approx 10$ pA zu messen, wozu aber zur Reduktion des Messrauschens eine Mittelung über 40-50 Messreihen nötig ist. Da die Messungen zur Winkelabhängigkeit bei jedem Beschusswinkel eine erneute Justierung des Signals erforderten, wurde auf Tunnelsignale im Bereich von $I_{\text{Tunnel}} \approx 10$ pA im Sinne der Praktikabilität verzichtet. Weiterhin muss bei der Wahl des Primärionenstroms berücksichtigt werden, dass der Tunnelstrom und somit die gemessene innere Emission bei senkrechtem Einfall maximal ist, beim Übergang zu streifendem Einfall jedoch immer geringer wird. Es ist daher empfehlenswert, bei den Messungen zur Beschusswinkelabhängigkeit bei senkrechtem Einfall mit einem höheren Messsignal zu beginnen, um die Messsignale unter streifendem Einfall noch auflösen zu können.

7.3 Auswertung der Messsignale

Die Ausbeute der inneren Emission wurde gemäß Gleichung (7.1) bestimmt. In Analogie zur Gleichung (4.3) wurde hier das winkelabhängige Stromsignal I_{Tunnel} gemessen und dieses auf den Faraday-Cup-Strom I_{FC} bei senkrechtem Einfall normiert.

$$\Gamma_{IEE} = \frac{I_{Tunnel}(\Theta)}{I_{FC}} \quad (7.2)$$

Um die Funktionalität der MIM-Systeme zu prüfen, wurden vor und nach den Messungen Kennlinien aufgenommen. Näheres zu Kennlinien ist in Anhang A.1.3 zu finden.

7.3.1 Messung der Beschusswinkelabhängigkeit

Der schematische Ablauf einer Messreihe zur Beschusswinkelabhängigkeit der inneren Emission ist hierbei wie folgt:

1. Messung der MIM-System-Kennlinie (siehe Anhang A.1.3)
2. Messung des Faraday-Cup-Stroms I_{FC}
3. Messung des Tunnelstroms I_{Tunnel} bei senkrechtem Einfall (0°)
4. Sukzessive Erhöhung des Beschusswinkels durch Verkipfung der Probe in 5° -Schritten und Messung der winkelabhängigen Ströme I_{Tunnel} .
5. Erneute Messung des Tunnelstroms bei senkrechtem Einfall, um Ergebnis aus 3. zu verifizieren.
6. Erneute Messung des Faraday-Cup-Stroms um Ergebnis aus 2. zu verifizieren.
7. Erneute Messung der MIM-System-Kennlinie

Die Technik der Datenauswertung wird anhand von Abbildung 7.7 erklärt. Neben den (im Potentiostat und dem Keithley 171) verwendeten Maßnahmen zur Signalfilterung gibt es hier weitere Möglichkeiten, das Signal/Rausch-Verhältnis zu verbessern:

- (Links unten) Nach erfolgreichem Import der Messwerte in Origin⁸ konnte dort softwareseitig ein Tiefpass auf die Daten angewendet werden. Erfahrungsgemäß liefert hier eine Grenzfrequenz von 13.6 Hz die besten Resultate.
- (Rechts unten) Während der Messung ist es mit dem Oszilloskop möglich, über ein paar Schüsse zu mitteln und danach den Wert auszugeben. Hierdurch konnte auch das Messrauschen signifikant reduziert werden.

Beide Methoden haben ihre Vor- und Nachteile. In der ersten Methode wird die Probe nur weniger bestrahlt und hat somit eine längere Lebensdauer, allerdings ist es schwieriger die Signale zu optimieren, da die Rauschamplitude mitunter größer als das Messsignal wird. Bei der zweiten Methode verhält sich entgegengesetzt. Es ist somit erstrebenswert, die Rauschamplitude so gering wie möglich zu halten. Dies wurde versucht, indem der Messaufbau samt Zuleitungen großflächig mit Alufolie abgeschirmt wurde und die benutzten Messgeräte zur Vermeidung von Erdschleifen sternförmig geerdet wurden. Weiterhin

⁸ Origin ist ein kommerzielles Programm zur Datenverarbeitung: <http://originlab.com/>

wurden zur Reduktion des Messrausches die Erden der drei Messkabel vom Probenhalter zum Potentiostaten gesondert abgezweigt und durch die Verwendung von Schutzsteckern abgeschirmt.

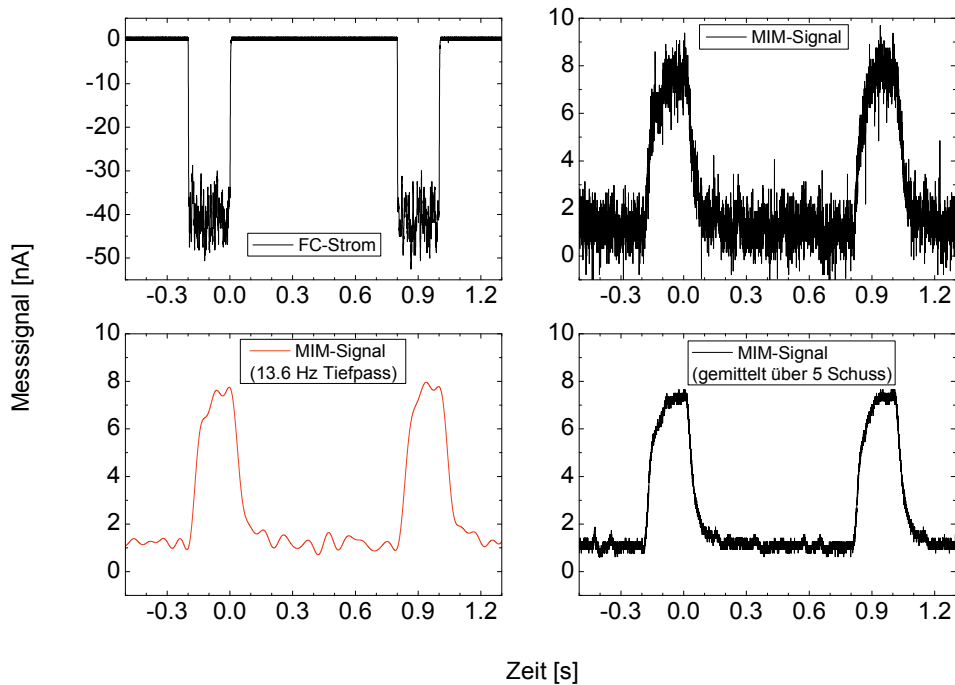


Abbildung 7.7: Messkurven zur Bestimmung der Tunnelausbeute für 7 keV Ar^+ unter einem Winkel von 80° beim Beschuss eines $\text{Ag|AlO}_x\text{|Al}$ -Systems mit einer Silberschichtdicke von $d_{\text{Ag}} = 40\text{ nm}$. Links oben ist das Faraday-Cup-Signal des Primärionenstroms unter 0° , rechts oben die Stromantwort des MIM-Systems zu sehen. Unten sind zwei Methoden zur Signalverbesserung: Links ein Softwaretiefpass (Origin) und rechts Mittelung im Experiment

7.3.2 Messung der Biasspannungsabhängigkeit

Wie bereits von Stefan Meyer [7] gezeigt wurde, weisen die Tunnelströme I_{Tunnel} eine Biasspannungsabhängigkeit auf, da sich (je nach Wert von U_{Bias}) Elektronen- und Löcherstrombeiträge verändern. Werden beide gleich groß, so kompensieren sie sich und es wird ein Tunnelstrom von null gemessen. Dieser Wert von U_{Bias} ist (wie bereits in Kapitel 3 skizziert) interessant, da er laut unseren numerischen Simulationen Aufschluss über die voraussichtliche (räumlich und zeitlich begrenzte) Aufheizung des Elektronengases am Ag|AlO_x -Interface gibt (siehe Abbildung 3.7).

Die experimentelle Bestimmung des Einflusses der Biasspannung auf die beschusswinkel-induzierte innere Ausbeute erfolgt wie in Abbildung 7.8 zu erkennen. Hier wurden Kennlinienintervalle von $[\pm 200\text{ mV}]$ auf $[0\text{ V}, 1.5\text{ V}]$ verschoben und während der Kennlinienaufnahme die Ionenkanone aktiviert. Wie zu sehen ist, gibt es als Baseline den aus der

Kennlinie bekannten Umladungsstrom, während die Beschussignale wie Nadeln auf dem Stromsignal überlagern.

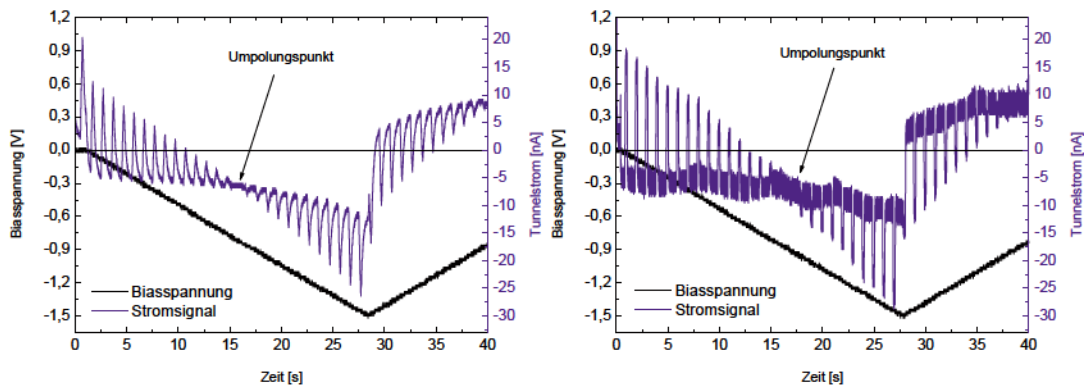


Abbildung 7.8: Messkurve zur Biasspannungsabhängigkeit des Stromsignals. Der gezeigte Fall entspricht $10\text{-keV Ar}^+ \rightarrow \text{Ag|AlO}_x\text{|Al-MIM}$ unter Beschusswinkel von 45° mit einer Pulsdauer von 200 ms bei einer Frequenz von 1 Hz. Gemessen wurde mit dem Potentiostat mit einer Scangeschwindigkeit von 50 mV/s und einer Bandbreite von 30 Hz (links) und 100 Hz (rechts).

Anhand des aufgenommenen Spektrums lässt sich sofort der Umpolungspunkt bestimmen, indem das Umpolen der Stromsignale (blau) mit dem jeweiligen Spannungswert (schwarz) verglichen wird. Weiterhin können die Abstände Peak \leftrightarrow Baseline direkt ausgelesen und so die bereits von Meyer [15] gemessene Biasspannungsabhängigkeit der inneren Ausbeute bestimmt werden.

Der Vorteil dieses Messverfahrens liegt darin, dass während der Messung sofort der Zustand des MIM-Systems an der Kennlinie abgelesen werden kann. Der Nachteil liegt darin, dass es zu Aufladungseffekten kommen kann, wodurch sich der Umpolungspunkt der Messsignale zu niedrigen Spannungen verschiebt. Dieser Drift kann gestoppt werden, indem die Messung unterbrochen und der Bandstruktur des MIM-System die Möglichkeit gegeben wird, sich durch das Aufnehmen von Kennlinien [± 200 mV] oder simples Ausruhen wieder zu relaxieren.

Für die Messung der Biasspannungsabhängigkeit der inneren Ausbeute empfiehlt es sich, größere Primärionenströme zu verwenden, da, zusätzlich zur beschusswinkelinduzierten Verringerung des gemessenen Tunnelstroms, dieser durch die als Gegenspannung fungierende Biasspannung abgesenkt wirkt. Für eine exakte Bestimmung des Umpolungspunkts muss die Differenz zweier aufeinanderfolgender Stromsignale auf dem Untergrundsignal möglichst groß sein, sodass sich ein gut auflösender Schnittpunkt (= Umpolungspunkt) des abfallenden beschussinduzierten Stromsignals mit dem kapazitiven Umladungssignal ergibt.

Eine weitere Verbesserung besteht darin, die Bandweitenbegrenzung des Potentiostaten auf einen Wert von 30 Hz zu stellen. Der Nachteil dieser Einstellung ist, dass das beschussinduzierte Stromsignal aufgrund der gestiegenen RC-Zeit nicht mehr sein Maximum erreicht und eine Bestimmung der absoluten Elektronenausbeute fehlerbehaftet ist. Dafür sind die Störsignale auf dem gemessenen Tunnelstrom nahezu komplett beseitigt, sodass die Bestimmung des Umpolungspunkts einfacher wird.

Diese Art der Messung bringt trotz ihrer Vorteile einen weiteren Nachteil mit sich. Dadurch, dass die Ströme bei variabler Biasspannung gemessen werden, ist es quasi unmöglich, über mehrere Messreihen zu mitteln. Jeder Wert der Ausbeute in einem Durchlauf wird somit einmalig gemessen.

7.4 Schichtdickenabtrag

Durch die Bestrahlung der Proben mit Primärionen kommt es aufgrund des Nuclear Stoppings zu Zerstäubungsprozessen, als Folge derer die effektive Schichtdicke am Beschusspunkt immer dünner wird. Diese Änderung der Schichtdicke ist für die MIM-Experimente essenziell wichtig, da die Signalstärke der Tunnelelektronen exponentiell von der Silberschichtdicke abhängt [15]. Eine Verringerung der Schichtdicke ändert somit direkt den gemessenen Ionenstrom und somit die Ausbeute.

Um diesen Effekt der Kraterbildung bzw. des Abtrags abzuschätzen, kann die Anzahl der Atome im Festkörper in einem gewissen Volumen gleich der Anzahl der durch Projektilbestrahlung erzeugten zerstäubten Festkörperatome gesetzt werden:

$$n_{Ag} \cdot A \cdot d = Y_{Ag} \cdot I_{FC} \cdot t_{Puls} \cdot e^{-1} \quad (7.3)$$

n_{Ag} beschreibt die Dichte der Silberatome im Festkörper, während A und d das Volumen beschreiben, welches durch die jeweils beschossene Fläche und deren Tiefe charakterisiert wird. Auf der rechten Seite bezeichnet Y_{Ag} die Zerstäubungsausbeute von $Ar \rightarrow Ag$ bei einem gewissen Primärionenstrom I_{FC} , bestehend aus Ionen mit der Einzelladung e , und t_{Puls} dessen zeitliche Länge. Durch Umformung ergibt sich:

$$d = \frac{Y_{Ag} \cdot I_{Ion} \cdot t_{Puls}}{n_{Ag} \cdot A \cdot e} \quad (7.4)$$

In Abbildung 7.9 ist der durch Ionenbestrahlung erzeugte Abtrag für den exemplarischen Fall 10-keV $Ar^+ \rightarrow Ag|AlO_x|Al$ zu sehen. Als Beschussfläche wurde hier $A = \pi r^2$ mit einem Radius von $r = 75 \mu m$ angenommen.

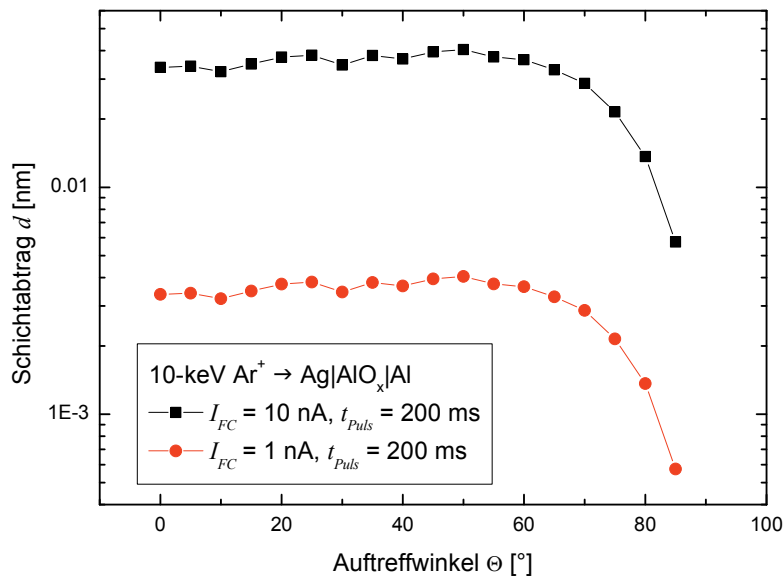


Abbildung 7.9: Silberschichtabtrag der MIM-Probe durch Bestrahlung mit Argon-Ionen.

Dieser wurde mit Hilfe von Gleichung (7.4) berechnet, wobei die (beschusswinkelabhängige) Zerstäubungsausbeute $Y_{Ag}(\Theta)$ sowie die Dichte n_{Ag} SRIM entnommen wurden. Der allgemeine Verlauf der Kurve setzt sich aus verschiedenen Faktoren zusammen. Zum einen nimmt die Zerstäubungsausbeute kontinuierlich mit dem Beschusswinkel zu. Zum anderen nimmt die Fläche des bestrahlten Bereiches auf der Probe zu, da sich aus dem ehemals kreisrunden Fleck aufgrund der Verkippung eine Ellipse ausbildet (siehe auch Abbildung 4.6). Dieser Effekt wirkt dem Anstieg der Ausbeute entgegen, sodass die Kratertiefe anfangs konstant bleibt und dann für große Winkel abfällt.

Es ist zu sehen, dass für Ströme zwischen 1-10 nA pro Messpunkt 0.3-0.03 Å abgetragen werden. Da bei den Messungen zur Beschusswinkelabhängigkeit der inneren Emission im Schnitt bei jedem Winkel 6 Schüsse abgegeben wurden, ergibt sich so ein mittlerer Abtrag von rund 2-0.2 Å pro Winkel. Der hiermit verbundene Signalanstieg kann laut Meyer mit $\exp(0.2 \text{ nm}/10 \text{ nm}) \approx 1.02$ abgeschätzt werden, woraus sich ein relativer Anstieg der Ausbeute um 2 % ergibt, welcher innerhalb der Messgenauigkeit liegt.

Um dem Effekt der Kraterbildung vorzubeugen, wurde vor jedem Start einer Messreihe der Beschussfleck der Primärionen durch Verstellung der x- und z-Justierschrauben am Manipulator über die Probe bewegt, um zu testen, ob das gemessene Signal überall gleich ist. Einzelne Positionen mit ungewöhnlich hohen Tunnelströmen wurden so bei der Messung gezielt ausgeschlossen.

8 Ergebnisse zur inneren Elektronenemission

8.1	Energieabhängigkeit.....	99
8.1.1	Messungen.....	99
8.1.2	Beschreibung mit Power Law	100
8.1.3	Beschreibung mit skE-Modell.....	102
8.2	Winkelabhängigkeit im Experiment	104
8.2.1	Einfluss der Primärenergie.....	104
8.2.2	Einfluss der Silberschichtdicke	106
8.2.3	Einfluss der Biasspannung	107
8.3	Winkelabhängigkeit in SRIM	111
8.3.1	Eindringtiefe und Reflexionswahrscheinlichkeit	111
8.3.2	Energie- und Impulsübertrag an das Elektronensystem.....	112
8.4	Ballistischer Transport der Elektronen.....	115
8.4.1	Diskussion der Grenzfälle	115
8.4.2	Diskussion des Fallbeispiels 10-keV Ar \rightarrow Ag.....	118
8.4.2.1	Einfluss der Elektronen	118
8.4.2.2	Einfluss der Projektile	122
8.4.2.3	Bestimmung der normierten Ausbeute.....	124
8.4.3	Allgemeiner Ansatz.....	124
8.4.3.1	Anzahl der angeregten Elektronen	125
8.4.3.2	Verteilung der angeregten Elektronen	125
8.4.3.3	Bestimmung der normierten Ausbeute.....	127
8.4.3.4	Diskussion weiterer Faktoren.....	130
8.5	Forward Electron Emission.....	136
8.5.1	Projektile im MeV-Bereich	136
8.5.2	Projektile im keV-Bereich.....	137
8.6	Fazit.....	140

8.1 Energieabhängigkeit

8.1.1 Messungen

Wie bereits von Stefan Meyer [112] gezeigt worden ist, weist die innere Elektronenausbeute eine Abhängigkeit von der kinetischen Energie der Primärionen auf und nimmt mit wachsender Energie der Projektile zu. Da die von Meyer durchgeführten Messungen unter einem festen Beschusswinkel von $\Theta = 45^\circ$ relativ zur Oberflächennormalen durchgeführt wurden, wird im Folgenden der Einfluss des Beschusswinkels auf die kinetische Energieabhängigkeit der inneren Ausbeute untersucht. Um die Vergleichbarkeit zu gewährleisten,

wurde zunächst die von Meyer gemessene Energieabhängigkeit für den Beschuss unter 45° reproduziert (linker Teil von Abbildung 8.1). Wie zu erkennen ist, stimmen die Ausbeuten für $d_{Ag} = 40$ nm (diese Arbeit) bzw. 44 nm [7] nahezu überein. Die leicht unterschiedliche Steigung liegt an einer unterschiedlichen Präparationstechnik. Wie von Meyer [7] bereits gezeigt wurde, hat die Art der Probenpräparation großen Einfluss auf den Absolutwert und die Steigung der Energieabhängigkeit der inneren Emission. Während die Steigung bei exsitu -Proben (welche zwischen Herstellung und Messung der Atmosphäre ausgesetzt worden sind) steiler ausfällt, ist diese bei insitu -Proben (bei welchen die Aufbringung der Silberschicht und die darauffolgende Messung ausschließlich unter Vakuum geschehen) eher flacher.

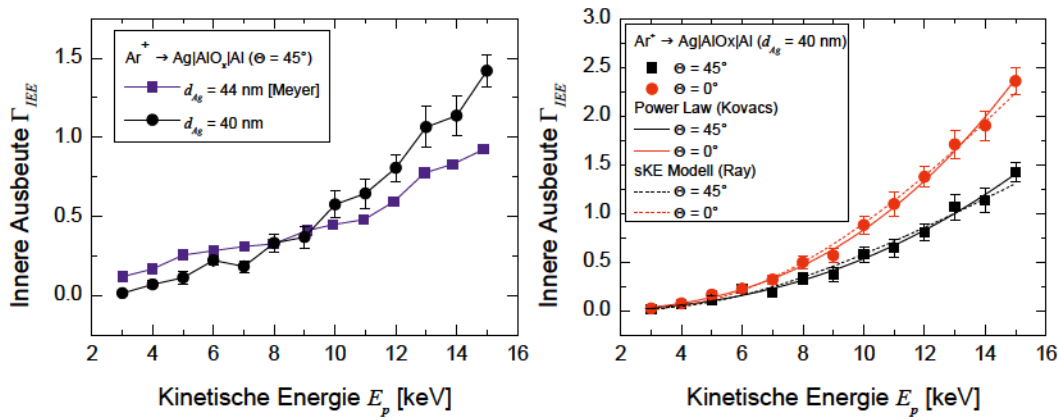


Abbildung 8.1: Vergleich der Energieabhängigkeit der inneren Elektronenausbeute (siehe auch Dissertation mit Messdaten von Stefan Meyer [7] (links) und Variation des Beschusswinkels (rechts). Die durchgezogenen Linien bestätigen das von Kovacs [17] angenommene Power Law für innere Elektronenemission (Gleichung (8.1)), während die gestrichelten Linien die Übereinstimmung mit dem das skE-Modell von Sroubek zeigen [16].

8.1.2 Beschreibung mit Power Law

Im rechten Teil von Abbildung 8.1 wird die Messung der inneren Ausbeute für zwei verschiedene Beschusswinkel präsentiert und gezeigt, dass diese (im Fall der durchgezogenen Linien) durch ein von Kovacs angenommenes Power Law, Gleichung (8.1), beschrieben werden kann [17].

$$\Gamma_{IEE} = \left(\frac{E_p}{\varepsilon_i} \right)^{\beta_i} \quad (8.1)$$

Es fällt auf, dass bei der inneren Emission genau wie im Fall der externen Emission die Elektronenausbeute direkt von der kinetischen Energie der Projektils abhängt (siehe auch Gleichung (2.9) für die externe Emission). Wenn die inneren Ausbeuten (wie im rechten Teil von Abbildung 8.1 angedeutet) für alle Beschusswinkel mithilfe von Gleichung (8.1) angepasst werden, ergeben sich die Diagramme in Abbildung 8.2.

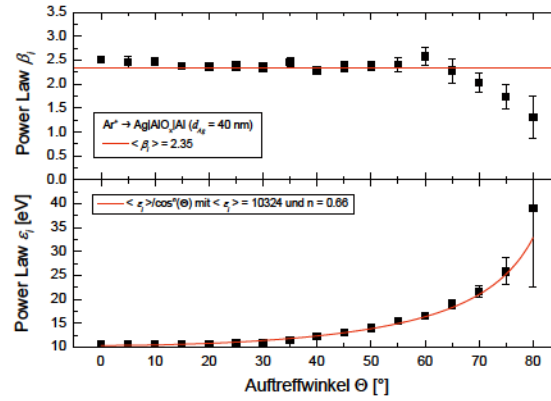


Abbildung 8.2: Anpassparameter des Power Laws (Gleichung (8.1)) für verschiedene Beschusswinkel. Während der Exponent β_i für alle Beschusswinkel gleich zu sein scheint, ist eine Winkelabhängigkeit in der Skalierungskonstante ε_i zu erkennen.

Laut Abbildung 8.2 scheint der Exponent β_i über einen Bereich von $\Theta = 0-75^\circ$ nicht von dem Beschusswinkel Θ abzuhängen (oben), wohingegen für ε_i eine klare Abhängigkeit von Θ beobachtet werden kann (unten). Diese Abhängigkeit kann mit einer inversen Potenz des Kosinus beschrieben werden, sodass sich, aufbauend auf den Resultaten zur Beschusswinkelabhängigkeit, eine neue Form des Kovacs schen Power Laws formulieren lässt:

$$\Gamma_{IEE} = \left(\frac{E_p}{\varepsilon_i} \right)^{\beta_i} \cdot \cos^{\beta_i - n}(\Theta) \quad (8.2)$$

Die in Gleichung (8.2) benötigten Parameter können aus Abbildung 8.2 gewonnen werden und sind in Tabelle 8.1 aufgeführt:

Größe	Abbildung 8.1	Kovacs [17]
ε_i [keV]	10.324	6
β_i	2.35	1.43
n	0.66	-

Tabelle 8.1: Parameter für die Power Law - Anpassung der Messdaten in Gleichung (8.2). Ebenfalls aufgeführt sind die Parameter aus der Arbeit von Kovacs [17].

Beim ersten Blick fällt auf, dass die Absolutwerte von sowohl ε_i als auch β_i in den Messungen von Kovacs um knapp 60 % kleiner als die gemessenen Werte sind. Die Abweichung des β_i -Wertes lässt sich (wie bereits im linken Teil von Abbildung 8.1 zu sehen) mit einer alternativen Präparationstechnik erklären [7]. Die im Rahmen dieser Arbeit verwendeten MIM-Systeme weisen hier aufgrund der exsitu-Präparation eine steilere Steigung in der Energieabhängigkeit der inneren Emission auf. Die Größe ε_i hingegen ist eine Sammelkonstante, welche sich aus dem Transport der Ladungsträger und der Transmissionswahrscheinlichkeit durch die Barriere zusammensetzt. Ein Unterschied zwischen den Messungen von Kovacs und den gezeigten besteht darin, dass in der Arbeit von Kovacs die Dicke der Silberschicht $d_{Ag} = 15$ nm und in unserem Fall $d_{Ag} = 40$ nm betrug. Da laut Mey-

er [15] die innere Ausbeute exponentiell von der Schichtdicke abhängt, müssten unsere Werte eigentlich kleiner als die von Kovacs sein, wohingegen der umgekehrte Fall beobachtet wird. Da die gezeigten Resultate über diverse Proben reproduzierbar sind, müssen die Gründe in der unterschiedlichen Probenpräparation liegen. Wie von Meyer gezeigt wurde, kann die Technik der Silber-Deposition (Verdampferbauart, Temperatur der Probe) Effekte auf den Absolutwert der inneren Ausbeute des MIM-Systems haben [7]. Je nach Konstruktion können so bei der Aufbringung der Silberschicht Silber-Ionen ins Oxid gelangen, wodurch die Barriere effektiv abgesenkt und aufgrund von implantierten Fremdatomen durchlässiger wird. Je nach Temperatur der Probe kann es weiterhin zu unterschiedlichem Wachstumsverhalten der polykristallinen Schicht kommen, was in einem unterschiedlichen Transportverhalten resultieren kann.

8.1.3 Beschreibung mit skE-Modell

Eine weitere Möglichkeit, die innere Elektronenemission in Dünnschichtsystemen zu beschreiben, wird von Ray [16] genutzt. In seiner Arbeit wird eine Variante des in Kapitel 2.3.2 eingeführten skE-Modells für die Charakterisierung der inneren Ausbeute für den He^+ -Beschuss eines $\text{Au}|\text{SiO}_2|\text{n-Si}(100)$ -MOS-Systems adaptiert. Hier wird die von Löhrincík & Sroubek [43] errechnete Wahrscheinlichkeit, ein Teilchen in einen Zustand oberhalb einer Barriere anzutreffen, als tatsächliche Elektronenausbeute Γ_{IEE} interpretiert. Das untersuchte Dünnschichtsystem sitzt hier auf einem n-dotierten $\text{Si}(100)$ -Kristall, bei welchem die obersten 5 nm oxidiert werden. Darüber befindet sich eine 1 nm Ti-Wetting Layer und zuoberst eine Goldschicht der Dicke 10 nm, welche dem Ionenbeschuss ausgesetzt wird. Die gestrichelten Kurven im rechten Teil von Abbildung 8.1 zeigen, dass mit dem in [16] verwendeten Formalismus (siehe Gleichung (8.3)) unsere Messdaten auch erfolgreich beschrieben werden können.

$$\Gamma_{IEE}^{skE} = A\rho^2 V^2 \ln \left(\exp \left(-\frac{\pi \Phi_e^{Ag}}{2\gamma v_p} \right) + 1 \right) \quad (8.3)$$

In obiger Gleichung (8.3) bezeichnet A die Sammeleffizienz des MOS-Systems und ρ die elektronische Zustandsdichte der beschossenen Schicht. Ferner stehen V für das Wechselwirkungspotential, γ für die Steilheit des Potentialverlaufs und Φ_e^{Ag} für die Barrierenhöhe am Interface. Wird Gleichung (8.3) zur Beschreibung der Energieabhängigkeit der inneren Elektronenausbeute verwendet, so ergeben sich die in Abbildung 8.3 gezeigten beschusswinkelabhängigen Werte für die Fitparameter γ und $A\rho^2 V^2$.

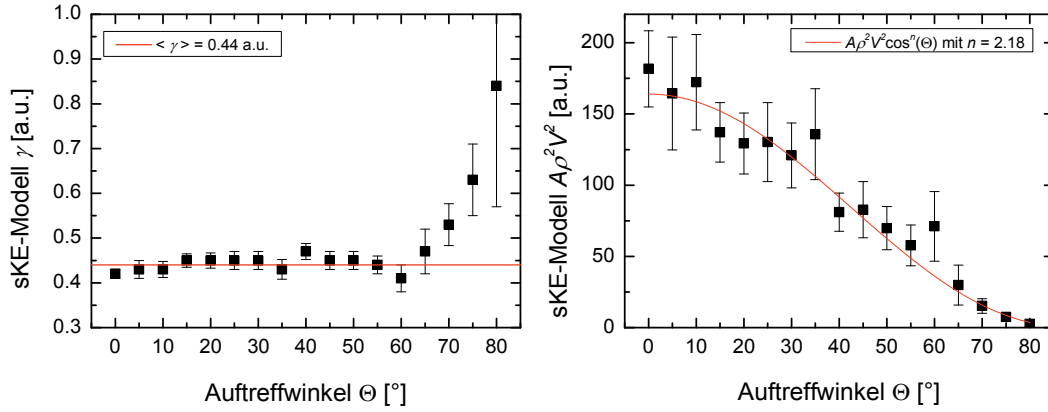


Abbildung 8.3: Anpassparameter γ und $A\rho^2V^2$ für das skE-Modell [16]. Während der Wert für γ über den Bereich von $0-70^\circ$ nahezu konstant bleibt, ist beim Vorfaktor $A\rho^2V^2$ eine Beschusswinkelabhängigkeit zu erkennen.

Wie zu erkennen ist, scheint der als inverse Abklinglänge interpretierte Parameter γ (siehe auch Kapitel 2.3.2) in Gleichung (8.3) für verschiedene Beschusswinkel nahezu konstant zu sein. Für den Vorfaktor $A\rho^2V^2$ lässt sich hingegen wiederum eine Beschusswinkelabhängigkeit feststellen, sodass die Gleichung für die innere Ausbeute folgendermaßen umgeschrieben werden kann:

$$\Gamma_{IEE}^{skE} = A\rho^2V^2 \cdot \cos^n(\Theta) \cdot \ln\left(\exp\left(-\frac{\pi\Phi_e^{Ag}}{2\gamma v_p}\right) + 1\right) \quad (8.4)$$

Während der Exponent im Kosinus beim Power Law (Kapitel 8.1.2) einen Wert von $\beta_i - n = 1.69$ beträgt, ergibt sich hier eine Kosinuspotenz von $n = 2.18$. Die weiteren Anpassparameter werden in Tabelle 8.2 aufgelistet.

Größe	Abbildung 8.1	Ray [16]
$A\rho^2V^2$ [a. u.]	163.96	0.539
γ [a. u.]	0.44	1

Tabelle 8.2: Ergebnisse (in atomaren Einheiten) für die Anpassung der Daten aus Abbildung 8.1 mithilfe des skE-Modells[43] nach Ray et. al.[16]. Ebenfalls aufgeführt sind die Parameter, welche sich für die Anpassung der energieabhängigen Messdaten des MOS-Systems in der Arbeit von Ray ergeben haben.

Beim Vergleich der Literaturdaten mit unseren Messungen fällt auf, dass der Vorfaktor eine Abweichung von mehreren Größenordnungen aufweist. Dies liegt zum einen an der unterschiedlichen Projektil-Target-Kombination, aber vermutlich auch an der anderen Schichtdicke. Weiterhin stellt sich die Frage, inwiefern das skE-Modell für die innere Emission gültig ist, da es eigentlich die Wechselwirkung zwischen Projektil und Elektronen an der Oberfläche eines Festkörpers beschreibt und in diesem Modell kein Transport berücksichtigt wird. Ray begründet die Gültigkeit des Modells mit der Annahme, dass durch das Eindringen des Projektils das Gitter und somit die Bandstruktur am Ort des Einschlages gestört wird. Dies führt laut [16] zu einer zeitlich begrenzten Ausbildung eines

entlang der Projektiltrajektorie orientierten Unterbands, welches die Mobilität der Anregung dramatisch erhöht. Ein ähnliches Verhalten ist auch für den MeV-Beschuss von dünnen Schichten bekannt, bei welchem das Projektil auf seinem Weg durch den Festkörper von sog. *Konvoi-Elektronen* begleitet wird [113, 114]. Es ist davon auszugehen, dass es auch im keV-Bereich zur Konvoi-Elektronenbildung kommt, dieser Effekt aber schwächer ausgeprägt ist.

8.2 Winkelabhängigkeit im Experiment

Um den Ursprung der Beschusswinkelabhängigkeit der inneren Elektronenemission zu verstehen, wird in diesem Abschnitt der Einfluss verschiedener experimenteller Parameter auf die Form der Beschusswinkelabhängigkeit untersucht. Im Folgenden wird daher die Beschusswinkelabhängigkeit der inneren Emission für verschiedene Primärenergien gemessen, um den Einfluss des Anregungsprozesses abzuschätzen. Des Weiteren wird die Beschusswinkelabhängigkeit der inneren Ausbeute bei variabler Silberschichtdicke und verschiedener Biasspannungen gemessen, um den Einfluss des Transports und der Transmission der Ladungsträger zu untersuchen. Das untersuchte Spektrum ist hier wie folgt:

- Abhängigkeit von der Primärenergie: $E_p = 3\text{-}15\text{ keV Ar}^+$ -Projektile
- Abhängigkeit von der Silberschichtdicke: $d_{Ag} = 20\text{-}40\text{ nm}$
- Abhängigkeit von der Biasspannung: $U_{Bias} = 0\text{-}1.5\text{ V}$

8.2.1 Einfluss der Primärenergie

In Abbildung 8.4 wird der Einfluss der kinetischen Energie der Primärionen auf die Winkelabhängigkeit der internen Ausbeute Γ_{IEE} präsentiert. Das hier beschossene Ag|AlO_x|Al-MIM-System hatte eine Silberschichtdicke von $d_{Ag} = 40\text{ nm}$.

In der linken Bildhälfte von Abbildung 8.4 ist die absolute innere Ausbeute Γ_{IEE} für verschiedene Projektilenergien gegen den Beschusswinkel aufgetragen. Es ist zu erkennen, dass sich der Absolutwert der Ausbeute mit der Energie ändert, jedoch alle Kurven innerhalb der Fehlergrenzen dasselbe charakteristische Verhalten aufweisen. Diese Vermutung wird in der rechten Hälfte von Abbildung 8.4, in welcher die auf den Mittelwert des Plateaus zwischen $\Theta = 0\text{-}30^\circ$ normierte Ausbeute aufgetragen ist, bestätigt.

- $0^\circ\text{-}30^\circ$: In diesem Winkelbereich ist die innere Ausbeute nahezu unabhängig vom Beschusswinkel.
- $30^\circ\text{-}60^\circ$: In diesem Bereich fällt die Ausbeute relativ stark mit zunehmendem Beschusswinkel.

- 60°-80°: Für streifenden Einfall beobachtet man ein Abflachen des Signalverlustes mit zunehmendem Winkel.

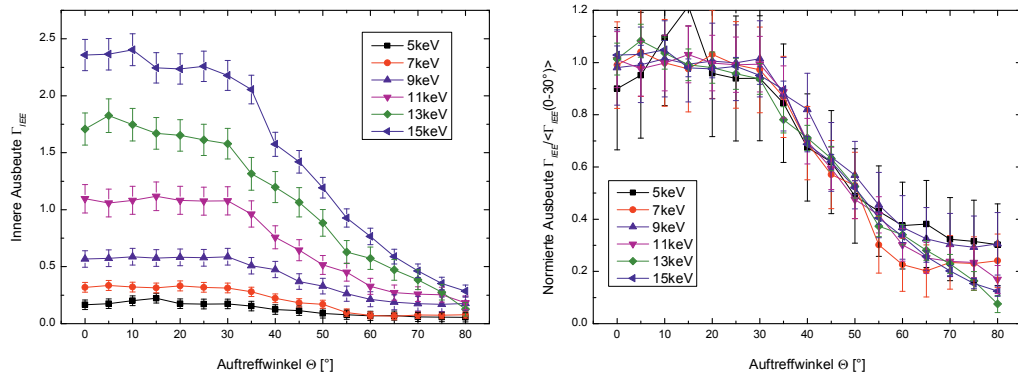


Abbildung 8.4: Einfluss der kinetischen Energie auf die Winkelabhängigkeit der internen Ausbeute. Im linken Diagramm ist die tatsächlich gemessene Ausbeute aufgetragen und im rechten Diagramm die normierte Ausbeute. Das hier verwendete $\text{Ag}|\text{AlO}_x|\text{Al}$ -MIM-System wies eine Silberschichtdicke von $d_{\text{Ag}} = 40 \text{ nm}$ auf.

Bei genauerer Betrachtung des linken Diagramms in Abbildung 8.4 fällt auf, dass die für verschiedene Primärenergien gemessenen inneren Ausbeuten alle für streifenden Einfall auf einen konstanten Beitrag zu fallen scheinen, welcher nach Interpolation der Messkurven einen Wert von $\Gamma_{\text{IEE}} \approx 0.05$ ergibt. Dieser Beitrag ist jedoch kein Untergrundrauschen im Messsignal, sondern tritt ausschließlich dann auf, wenn die Probe mit Ionen bestrahlt wird [115].

Eine mögliche Ursache für diese Untergrund-Ausbeute ist die (innere) Potentialemission von Elektronen [54, 88], welche bei der Neutralisation der positiv geladenen Argon-Ionen durch Auger-Prozesse erzeugt werden [116]. Weitere Untersuchungen von Kovacs [17] haben jedoch ergeben, dass der Beitrag der inneren Potentialemission im System $\text{Ar}^+ \rightarrow \text{Ag}|\text{AlO}_x|\text{Al}$ vernachlässigbar klein wird, sodass dieser Anregungsmechanismus ausgeschlossen werden kann.

Eine weitere mögliche Ursache des Untergrundsignals stellt die ioneninduzierten Plasmon-Anregung dar [115]. Plasmonen sind Kollektivschwingungen von Valenzelektronen im Festkörper und haben üblicherweise eine Lebensdauer von bis zu 1 fs, was wenigen Oszillationen entspricht. Eine direkte Anregung von Plasmonen durch Projektil-Ionen ist jedoch im hier präsentierten Fall nicht möglich, da die Ionen hierfür eine Geschwindigkeit v_p mit $v_p \approx 1.3 \cdot v_F$ benötigen würden [117]. Im untersuchten Fall $\text{Ar}^+ \rightarrow \text{Ag}$ würde sich so eine Mindestenergie von $E_{\text{th}}^{\text{Ag}} \approx 400 \text{ keV}$ ergeben. Experimentell werden aber auch unterhalb dieser Energieschwelle $E_{\text{th}}^{\text{Ag}}$ sog. Sub-Threshold Plasmonen beobachtet, welche durch verschiedene Prozesse angeregt werden können. In einer Arbeit von Ritzau [118] wurden für den Fall $\text{H}^+ \rightarrow \text{Al}$ drei mögliche Sub-Threshold Prozesse vorgeschlagen, bei welchen die Plasmonenanregung durch die potentielle Energie des Projektils, durch die Neutralisation

des Projektils durch einen Electron Capture Prozess oder durch schnelle Elektronen geschieht. Die schnellen Elektronen können hierbei entweder durch einen Auger-Prozess oder durch einen direkten Stoßprozess zwischen Projektil und Valenzelektron angeregt werden. In Veröffentlichungen von Baragiola [117] und Sánchez [119] wurden die schnellen Elektronen aus Projektil-Elektron-Stößen als dominanter Anregungsmechanismus für die Sub-Threshold Plasmonenanregung herausgearbeitet. Im Zuge der Plasmonenabregung wird dann ein angeregtes Elektron emittiert, welches danach beim Erreichen einer Grenzfläche detektiert werden kann.

Weitere Arbeiten zeigen, dass beim Auftreffen von Ionen auf einen Festkörper Sub-Threshold Plasmonen im Festkörper (Bulk Plasmonen) durch Elektronen erzeugt werden, welche sich von der Oberfläche entfernen, und die Intensität dieser Plasmonenanregung mit zunehmendem Beschusswinkel zunimmt [119]. Eine ähnliche Beobachtung wurde von Riccardi [120, 121] gemacht, welcher in seinen Messungen mit $\text{Ar}^+ \rightarrow \text{Al}$ mit Beschussenergien im keV-Bereich die Anregung von Bulk Plasmen bis zu einer Projektilenergie von 4 keV hinunter und somit weit unterhalb der Plasmon-Energieschwelle von $E_{th}^{\text{Al}} \approx 850 \text{ keV}$ auflösen konnte.

Es ist somit wahrscheinlich, dass das in Abbildung 8.4 bei streifendem Einfall beobachtete Untergrundsignal ebenfalls durch die An- und Abregung eines elektroneninduzierten Sub-Threshold Plasmons erklärt werden kann.

8.2.2 Einfluss der Silberschichtdicke

Für die Experimente zur Beschussabhängigkeit der internen Ausbeute bei verschiedenen Silberschichtdicken wurde jeweils ein MIM-Kontakt mit definierter Schichtdicke erstellt und dieser mit Primärionen bestrahlt. Auf eine kontinuierliche Messung der Schichtdickenabhängigkeit durch Aufdampfen und Zerstäuben von einer Schicht wie in [15] wurde hier verzichtet. Im Gegensatz zu den Messungen in [15] blieb die Position und Form des Beschussflecks auf der Probe in einer Messung nie dieselbe.

- Zum einen kam es beim Übergang vom senkrechten zu streifenden Einfall zu immer großflächigeren Strahlprofilen, sodass sich die Ionendosis pro Fläche änderte, was für unterschiedliche Zerstäubungsausbeuten und somit unterschiedliche Abtragraten sorgt (siehe auch Abbildung 7.9).
- Zum anderen wurde die absolute Position des Beschussflecks durch die Rotation des Probenhalters auf der Probe geändert, da die Drehachse nicht in der Oberflächenebene lag (siehe auch Abbildung 4.7). So wurden bei verschiedenen Beschusswinkeln verschiedene Bereiche der Probe bestrahlt.

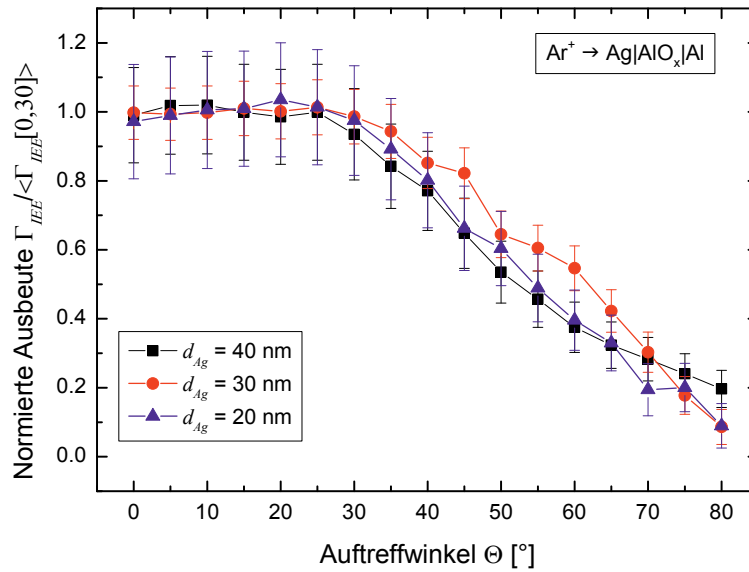


Abbildung 8.5: Winkelabhängigkeit der normierten inneren Ausbeute für verschiedene Silberschichtdicken. Die Beschussenergien sind 10 keV bei 30 nm und 40 nm sowie 7 keV bei 20 nm.

Die Ergebnisse für drei verschiedene Schichtdicken zwischen $d_{Ag} = 20$ –40 nm sind in Abbildung 8.5 dargestellt. Der untersuchte Schichtdickenbereich wurde durch einen Kompromiss zwischen Signalauflösung und Eindringtiefe der verwendeten Projektile begrenzt. Bei größeren Schichtdicken wären die Signale technisch nicht mehr vom Rauschen zu trennen gewesen und bei geringeren Schichtdicken würden die Projektile die Silberschicht durchschlagen und die Oxidschicht beschädigen, wodurch der MIM-Kontakt irreparabel zerstört werden würde.

Die inneren Ausbeuten in Abbildung 8.6 wurden auf den Mittelwert der Ausbeute im Intervall $[0^\circ, 30^\circ]$ normiert, da sich hier die Ausbeute nahezu konstant zeigt und nur innerhalb der Fehlergrenzen variiert. Es fällt auf, dass innerhalb der Fehlergrenzen keine signifikante Veränderung des Verlaufs der inneren Elektronenausbeute für wachsende Beschusswinkel beobachtet werden kann und die Beschusswinkelabhängigkeit in unserem Fall ein vornehmlich geometrischer Effekt zu sein scheint.

Als Fazit kann festgehalten werden, dass die beobachtete Beschusswinkelabhängigkeit der inneren Emission weder von der Beschussenergie noch von der Silberschichtdicke abhängen scheint. Der Effekt der Beschusswinkelabhängigkeit scheint somit rein geometrischer Natur zu sein.

8.2.3 Einfluss der Biasspannung

Wie bereits von Meyer [15] gezeigt wurde, kommt es durch eine Variation der Biasspannung zu einer energetischen Verschiebung des Fermi-Niveaus von Silber E_F^{Ag} gegenüber

dem Fermi-Niveau von Aluminium E_F^{Al} (siehe auch Abbildung 3.4). Während durch eine negative Biasspannung das Silber-Fermi-Niveau angehoben wird, sodass bei der Transmission die Elektronen bevorzugt und die Löcher benachteiligt werden, verhält es sich bei positiver Biasspannung entgegengesetzt.

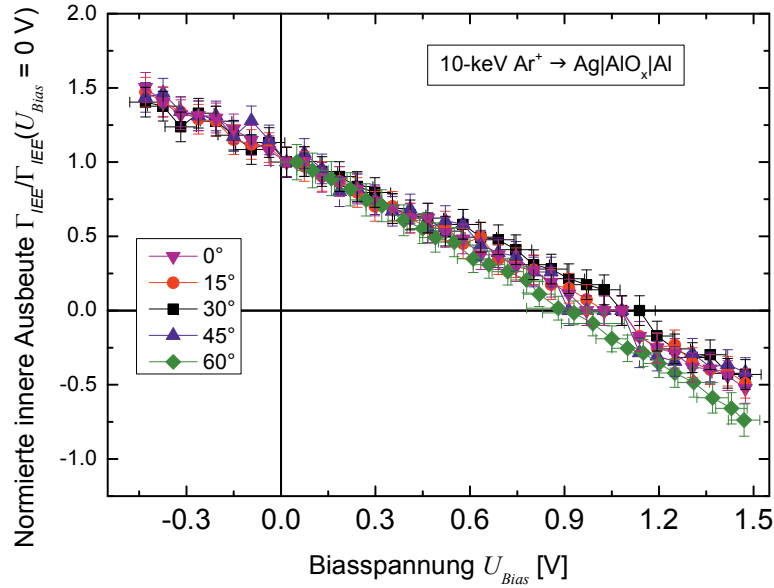


Abbildung 8.6: Normierte Biasspannungsabhängigkeit der inneren Ausbeute auf den Wert bei $U_{Bias} = 0 \text{ V}$. Es ist zu erkennen, dass die Form der Kurve für alle präsentierten Winkel unverändert ist und die Kurven für den untersuchten Winkelbereich im Rahmen der Messgenauigkeit übereinstimmen.

Eine interessante Größe bei der Analyse der Biasspannungsabhängigkeit ist der sog. *Umpolungspunkt* U_0 (siehe Kapitel 3.3) der inneren Ausbeute. Dieser gibt an, um welche Energie eU_{Bias} die Fermi-Niveaus gegeneinander verschoben werden müssen, sodass sich die (von null verschiedenen) Beiträge von Elektronen und Löchern durch die Oxidschicht genau kompensieren. Wie bereits in Kapitel 3.3 aus Modellrechnungen an einem $Ag|AlO_x|Al$ -MIM-System postuliert wurde, ist der Umpolungspunkt der inneren Elektronenausbeute zudem ein Indiz dafür, welche Elektronentemperatur im Silberfilm am Interface zum Oxid herrschen wird (siehe auch Abbildung 3.7). In Abbildung 8.6 sind hierzu die biasspannungsabhängigen Ausbeuten der inneren Emission für 10-keV $Ar^+ \rightarrow Ag|AlO_x|Al$ unter verschiedenen Beschusswinkeln Θ aufgetragen, wobei die Messkurven aus Gründen der Übersicht auf den Wert bei $U_{Bias} = 0 \text{ V}$ normiert worden sind. Wie zu erkennen ist, verhält sich die Ausbeute für alle untersuchten Winkel im Rahmen der Messgenauigkeit in etwa gleich und zeigt mit wachsendem Beschusswinkel keine neuen Verhaltensmuster.

Um den eigentlich interessanten Parameter $\Gamma_{IEE}/\Gamma_{IEE}(U_{Bias} = 0 \text{ V})$ genauer aufzulösen, wird die Biasspannungsabhängigkeit der inneren Ausbeute für verschiedene Auftreffwinkel über mehrere Messreihen gemittelt in der linken Hälfte von Abbildung 8.7 präsentiert.

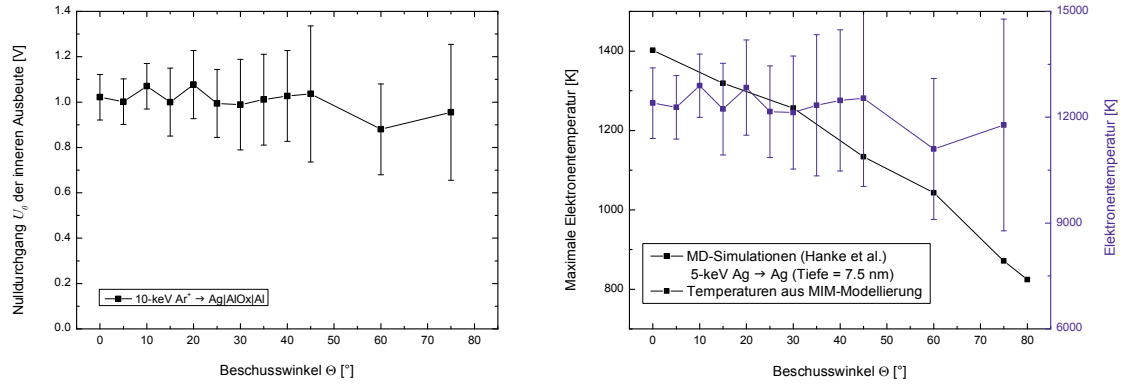


Abbildung 8.7: (Links) Beschusswinkelabhängiger Umpolungspunkt der internen Elektronenausbeute. Die Nulldurchgänge wurden aus Messreihen analog zu Abbildung 8.6 extrahiert. (Rechts) Für experimentell gemessene Nulldurchgänge laut Abbildung 3.7 prognostizierte Elektronentemperaturen am Interface. Dazu von Hanke et al.[122] in MD-Simulationen für 5-keV Ag → Ag berechnete maximale Elektronentemperaturen in einer Tiefe von $x = 7.5 \text{ nm}$.

Wie zu erkennen ist, bleibt der Umpolungspunkt innerhalb der Fehlerbalken in etwa gleich, wobei die Fehlerbalken speziell bei größeren Winkeln immer größer werden. Dies liegt daran, dass mit zunehmenden Werten von Θ und U_{Bias} die gemessenen Tunnelströme (in der Nähe des Umpolungspunkts) immer kleiner werden und nur noch schwer vom Untergrundsignal zu trennen sind. Zudem stellt das Anlegen hoher Biasspannungen eine Belastung für die elektronische Struktur der Probe da, sodass der Probe in regelmäßigen Abständen Gelegenheit gegeben wurde, durch das Aufnehmen von Kennlinien zu relaxieren.

Durch Vergleich der gemessenen mit den in Kapitel 3.3 simulierten Nulldurchgängen ist es zudem möglich, anhand von Abbildung 3.7 die (zeitlich und räumlich) lokalisierten Elektronentemperaturen zu bestimmen, welche laut Modell am Ag|AlO_x-Interface herrschen müssten. Die eingezeichneten Fehlerbalken für die Elektronentemperatur entsprechen der Unsicherheit bei der Bestimmung des Umpolungspunkts.

Die aus den gemessenen Nulldurchgängen gewonnenen Elektronentemperaturen werden in blauer Farbe (auf die rechte Achse bezogen) in der rechten Hälfte von Abbildung 8.7 präsentiert. Zum Vergleich sind errechnete, maximale Elektronentemperaturen in schwarzer Farbe (auf die linke Achse bezogen) eingezeichnet, welche in unserer Arbeitsgruppe von Hanke [122] für den Fall 5-keV Ag → Ag(amorph) in einer Tiefe von $x = 7.5 \text{ nm}$ bestimmt wurden.

Wie zu erkennen ist, stellt sich im Fall $10\text{-keV Ar}^+ \rightarrow \text{Ag|AlO}_x\text{|Al}$ am Ag|AlO_x -Interface eine Elektronentemperatur von $T_e \approx 12000\text{ K}$ ein, welche mit zunehmendem Beschusswinkel um einen Mittelwert schwankt. Dies ist ein unerwartetes Resultat, da es impliziert, dass sich die Elektronentemperatur am Ag|AlO_x -Interface für verschiedene Beschusswinkel (im Rahmen der Messgenauigkeit) nicht merklich zu ändern scheint, obwohl ein Rückgang der Elektronenausbeute beobachtet wird.

Im Temperaturverlauf von Hanke [122] ist hingegen ein klarer Abwärtstrend zu beobachten, da die (um eine Größenordnung kleineren) Elektronentemperaturen mit zunehmendem Beschusswinkel monoton abnehmen. Mithilfe der Elektronentemperaturen aus den MD-Simulationen kann durch die Verwendung der modifizierte Richardson-Dushman Gleichung [56] die Beschusswinkelabhängigkeit der inneren Elektronenausbeute in einer Tiefe von $x = 7.5\text{ nm}$ berechnet werden. Diese klingt jedoch im Gegensatz zum Experiment über den Winkelbereich von $\Theta = 0\text{-}80^\circ$ um knapp 10 Größenordnungen ab [123]. Ein möglicher Grund für die Diskrepanz zu dem experimentell beobachteten Rückgang um eine Größenordnung könnte sein, dass den MD-Simulationen ein diffusives Transportmodell [124] zugrunde liegt. In diesem ist kein ballistischer Transport von heißen Elektronen enthalten, welche am Einschlagort angeregt worden sind.

Das Verhalten der experimentell beobachteten gleichbleibenden Elektronentemperatur entspricht eher dem Verhalten, welches in den MD-Simulationen [122, 125] an der Oberfläche der beschossenen Probe beobachtet wird. Wie in der aus [125] entnommenen Abbildung 8.8 zu erkennen ist, bleibt die Elektronentemperatur an der Oberfläche für verschiedene Auftreffwinkel Θ in etwa gleich, nur die Anregungsdauer ändert sich. Dies spricht dafür, dass sich die innere Emission hauptsächlich aus heißen Elektronen und Löcher zusammensetzt, welche an der Oberfläche angeregt werden und sich dann ballistisch durch den Festkörper Richtung Oxidschicht bewegen. Eine erhöhte Dauer der Anregungstemperatur würde aber bedeuten, dass insgesamt mehr Elektronen und Löcher angeregt werden. Dies ist im Einklang mit Beobachtungen in der externen Elektronenemission, da dort die Ausbeute mit zunehmendem Beschusswinkel ansteigt. Im Fall der inneren Emission hingegen wird beobachtet, dass die Ausbeute mit wachsendem Beschusswinkel kleiner wird, sodass es weitere Effekte (Eindringtiefe, Anisotropie der Anregung) geben muss, welche im weiteren Verlauf der Arbeit diskutiert werden sollen.

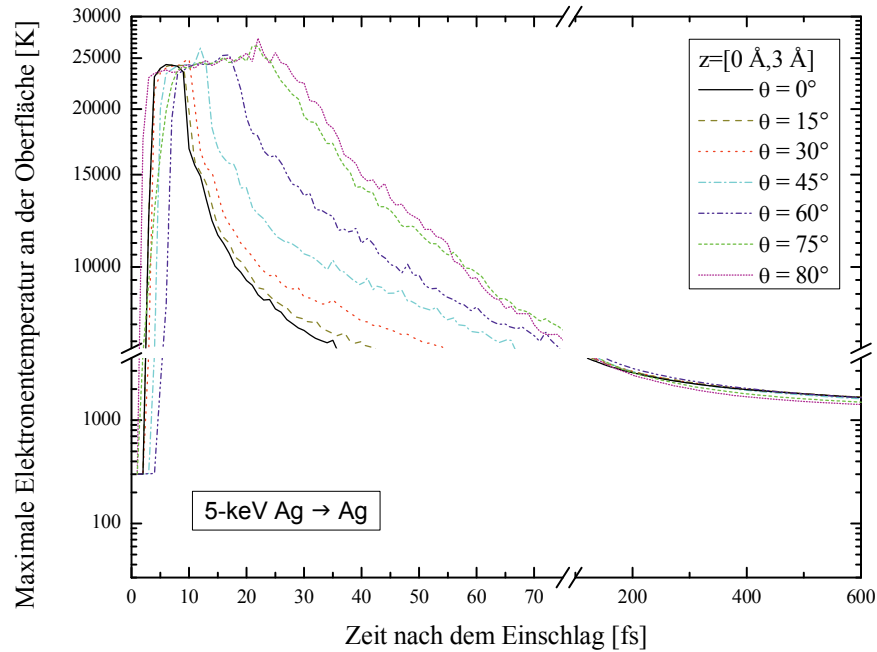


Abbildung 8.8: Zeitlicher Verlauf der maximalen Elektronentemperatur an der Oberfläche für 5-keV $\text{Ag} \rightarrow \text{Ag}$. Abbildung entnommen aus [125]

8.3 Winkelabhängigkeit in SRIM

8.3.1 Eindringtiefe und Reflexionswahrscheinlichkeit

In diesem Abschnitt soll versucht werden, das charakteristische Abklingen der inneren Elektronenausbeute für wachsenden Beschusswinkel durch die Analyse verschiedener physikalischer Faktoren zu verstehen.

Eine entscheidende Änderung beim Übergang vom senkrechten zum streifenden Einfall der Projektile besteht darin, dass für schiefwinkligen Beschuss nur noch ein gewisser Anteil der auftreffenden Projektile in den Festkörper eindringt und die übrigen reflektiert werden. Abbildung 8.9 zeigt SRIM-Resultate für den exemplarischen Fall 10-keV $\text{Ar} \rightarrow \text{Ag}$. Auf der rechten Achse sind in roter Farbe die Prozentsätze der Projektile aufgetragen, welche beim Auftreffen auf die Oberfläche nicht reflektiert werden, sondern in den Festkörper eindringen. Wie zu sehen ist, nimmt der Anteil eindringender Projektile mit zunehmendem Beschusswinkel im Bereich $\Theta = 0\text{--}80^\circ$ monoton um bis zu zwei Drittel ab.

Es ist darüber hinaus vorstellbar, dass unterschiedliche Einfallswinkel auch zu unterschiedlichen Anregungs-Tiefenprofilen führen. Je flacher der Einfall, desto stärker wird die primäre Anregung an der Oberfläche lokalisiert. Dies führt dann naturgemäß zu mehr Elektronenemission ins Vakuum, für die innere Elektronenemission muss diese Anregung dann aber erst an die vergrabene Tunnelbarriere transportiert werden. Mit größerem Einfalls-

winkel steht dann an der Oberfläche mehr Anregungsenergie zur Verfügung, Welche aber über eine größere Distanz transportiert werden muss. Ein Indiz für die Tiefenverteilung stellt die mittlere Eindringtiefe der Projektile in den Festkörper dar, welche in 8.10 (auf die linke Achse bezogen) für den Fall 10-keV Ar \rightarrow Ag in schwarzer Farbe aufgetragen ist. Diese geht mit zunehmendem Beschusswinkel nur um knapp 30 % zurück und scheint somit nicht der Hauptgrund für den Rückgang der Ausbeute um eine Größenordnung verantwortlich zu sein

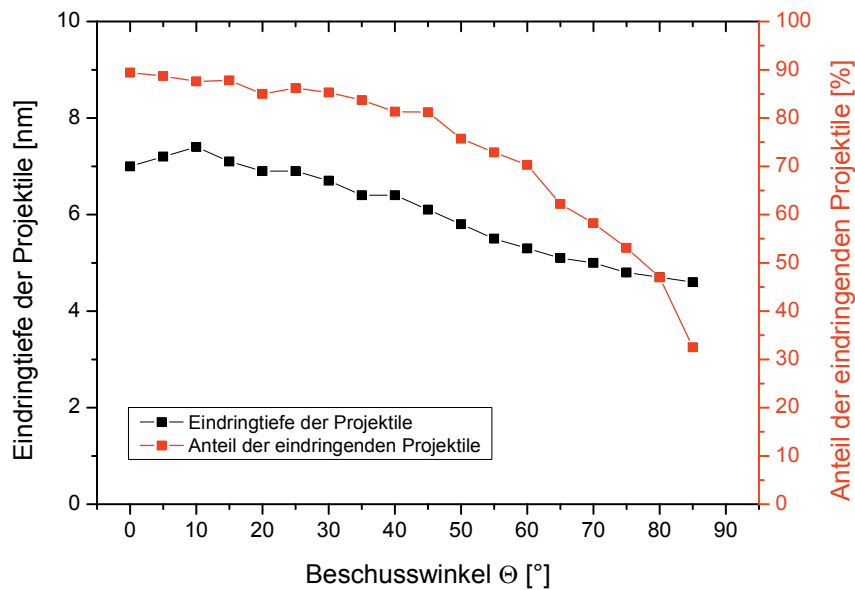


Abbildung 8.9: SRIM-Simulation der mittleren Eindringtiefe (schwarz) und der Eindringwahrscheinlichkeit (blau) der Projektile in den Festkörper. Es wurde pro Simulationspunkt über 1000 Projektile gemittelt.

8.3.2 Energie- und Impulsübertrag an das Elektronensystem

Um basierend auf den groben Abschätzungen in Kapitel 8.3.1 ein genaueres Bild vom Ort der Anregung sowie Anzahl der angeregten Elektronen zu bekommen, soll an dieser Stelle diskutiert werden, wo das Projektil wie viel Energie an den Festkörper abgibt. Der wesentliche Prozess hierbei ist das Electronic Stopping, welches sich nach mit SRIM durchgeführten Rechnungen für den Modellfall 10-keV Ar \rightarrow Ag mit zunehmender Tiefe wie in Abbildung 8.10 gezeigt verhält. Hier sind tiefenabhängig die durch Electronic Stopping der Projektile und der Recoils in das Elektronensystem transferierte Energie exemplarisch für zwei verschiedene Auftreffwinkel Θ abgebildet. Es ist zu erkennen, dass die im Festkörper deponierte Energie erwartungsgemäß mit der Eindringtiefe der Projektile korreliert, da der Energieverlust für große Beschusswinkel deutlich oberflächennaher geschieht und daher wenig Anregung tiefer im Festkörper stattfindet.

Ein bemerkenswertes Resultat ist zudem, dass der Beitrag der Recoils zur kinetischen Anregung in vielen Fällen größer als der der Projektile ist. Dieses Ergebnis ist einleuchtend, da es als Folge der Stoßkaskade in Summe mehr Recoils als Projektile gibt. Hierbei ist jedoch zu beachten, dass ein einzelnes Recoil im Mittel weniger Energie als ein Projektil mit sich führt und dieser Effekt in Abbildung 8.10 durch die im Verhältnis zum Projektil größere Anzahl der Recoils kaschiert wird. Die Recoils werden also (basierend auf Gleichung (2.10)) voraussichtlich vermehrt viele niederenergetische Elektronen anregen, während das Projektil aufgrund seiner hohen Initialenergie die hochangeregten Elektronen erzeugen wird.

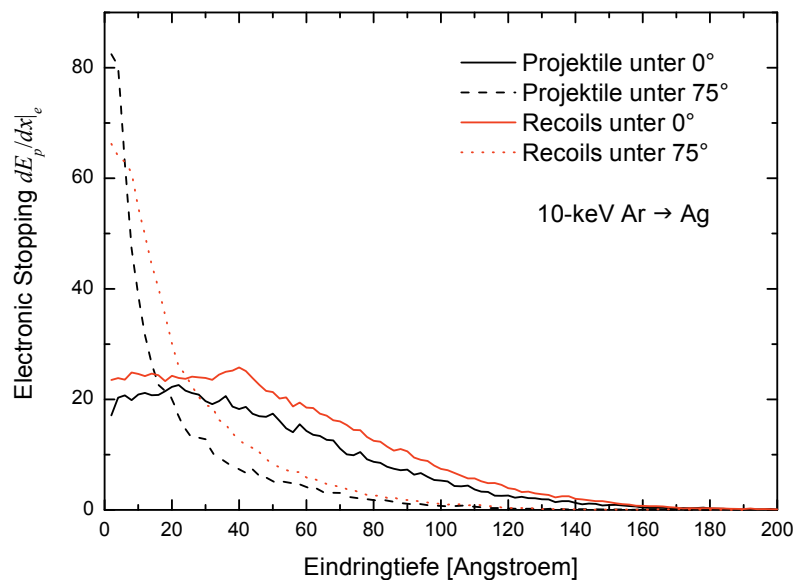


Abbildung 8.10: Tiefenabhängiger elektronischer Energieverlust der Argon-Projektile und Silber-Recoils beim Eindringen in den Silber-Festkörper [SRIM2011]. Recoils sind durch Stöße in Bewegung versetzte Festkörperlamente.

Wie aus der klassischen Streutheorie bekannt ist, wird bei einem Stoßprozess zweier Teilchen neben der Energie auch ein Impuls übertragen, welcher die Richtung nach dem Stoß festlegt. Nachfolgend soll daher der Einfluss des Auftreffwinkels Θ der Projektile, relativ zur Oberflächennormalen, auf die Richtung der elektronischen Anregung im Festkörper untersucht werden. Hierfür bietet SRIM2011 die Möglichkeit, 3D-Plots des in Abbildung 8.10 skizzierten Energieverlustes zu erstellen, in welchen zusätzlich zu der vertikalen Anregung auch die laterale Ausdehnung der elektronischen Anregung berücksichtigt wird.

In Abbildung 8.11 sind zwei solche Rechnungen für die Auftreffwinkel $\Theta = 0^\circ$ (oben) und $\Theta = 75^\circ$ (unten) für den Fall 10-keV Ar \rightarrow Ag zu sehen, wobei jeweils über 1000 Projektile gemittelt wurde. Wie zu erkennen ist, wird bei senkrechten Auftreffen des Projektils die Energie schwerpunktmäßig in den ersten 5 nm in der Tiefe und 1 nm in der Breite depo-

nert, wohingegen bei einem Auftreffwinkel von 75° die Energie hauptsächlich innerhalb des ersten Nanometers und einer Breite von 3 nm ins Elektronengas transferiert wird. Darüber hinaus ist zu sehen, dass für 75° im Vergleich zu 0° das Anregungsvolumen, in welchem Primärelektronen erzeugt werden, als Ganzes um den Auftreffwinkel verkippt wird. Die laterale Ausdehnung der Verteilung kommt neben der Streuung des Projektils an Festkörperatomen durch Recoils zustande, welche um das Projektil herum angestoßen werden und ihrerseits wieder Elektronen anregen.

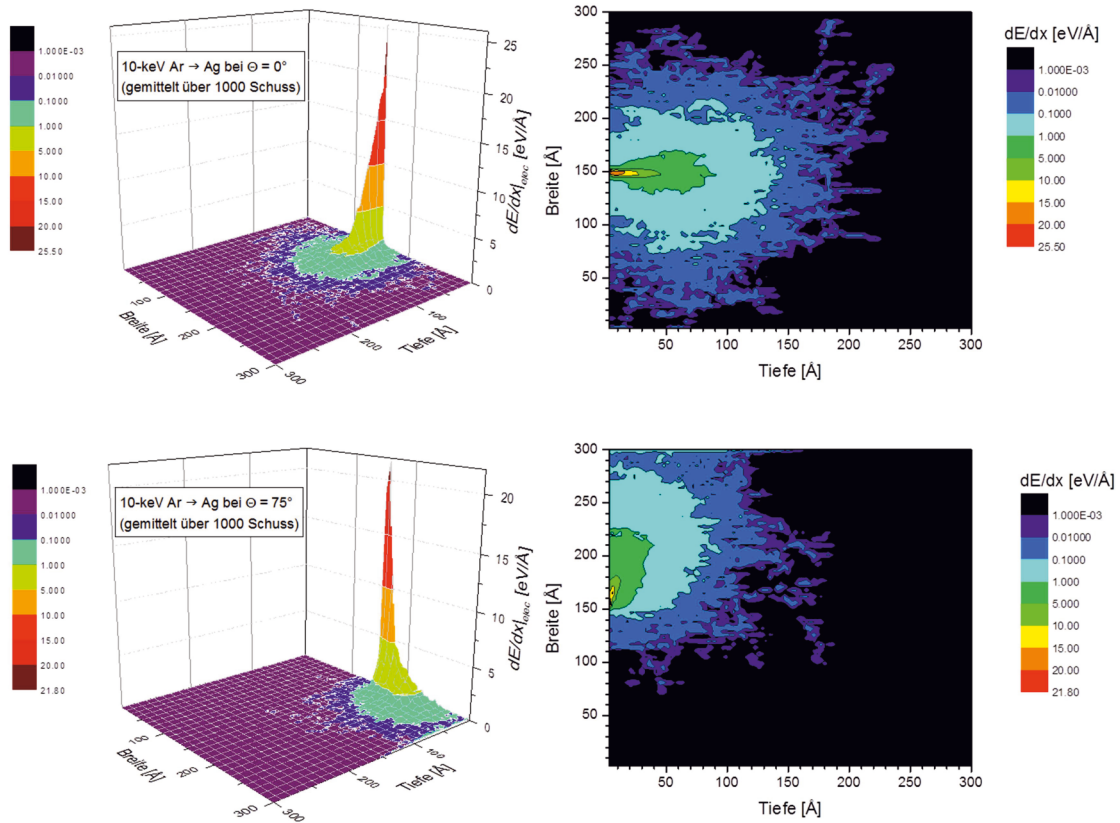


Abbildung 8.11: Anisotropie der elektronischen Anregung im Festkörper für den Fall $10 \text{ keV Ar} \rightarrow \text{Ag}$. In den oberen beiden Bildern ist der Energietransfer von Projektilen und Recoils ins Elektronensystem für senkrechten Einfall zu sehen, während die unteren beiden Bilder den Energieverlust für streifenden Einfall unter 75° illustrieren. Die Rechnungen wurden in SRIM2011 durchgeführt.

Es ist also zu erwarten, dass der Einschusswinkel des Projektils einen großen Einfluss auf die im Festkörper erzeugte elektronische Anregung hat. Während laut Abbildung 8.11 niedrig angeregte Elektronen voraussichtlich mit näherungsweise isotrop verteilten \vec{k} -Vektoren in allen Richtungen angeregt werden (bläulicher Farbton), ist zu erwarten, dass die hoch angeregten Elektronen eine Vorzugsrichtung in Richtung des unter Θ eingeschossenen Projektils aufweisen werden (rötlicher Farbton).

Die Integration der in Abbildung 8.10 gezeigten Kurven liefert die Gesamtenergie, welche insgesamt durch Electronic Stopping von Projektil und Recoils an das Elektronensystem abgegeben wird. Dieser Energieübertrag ist in Abbildung 8.12 auf die Primärenergie der

Projektile normiert aufgetragen. Überraschenderweise bleibt der relative Anteil der ins Elektronensystem transferierten Energie für den Winkelbereich von 0-60° konstant. Erst bei Winkeln jenseits der 60° macht sich bemerkbar, dass knapp 40 % der Projektile (siehe Abbildung 8.9) beim Auftreffen auf die Oberfläche reflektiert werden. Abbildung 8.12 spiegelt auch das Verhältnis von Nuclear und Electronic Stopping (siehe Abbildung 2.1) in dem von uns untersuchten Energiebereich wieder. Die Tatsache, dass ein Großteil der elektronischen Anregung von den Recoils geleistet wird, welche sich vor dem Projektileinschlag auf ihren Gitterplätzen in Ruhe befanden, zeigt, dass beim Abbremsvorgang des Projektils viel Energie durch Nuclear Stopping an die Recoils geht, welche ihrerseits wiederum durch Electronic Stopping Elektronen anregen können.

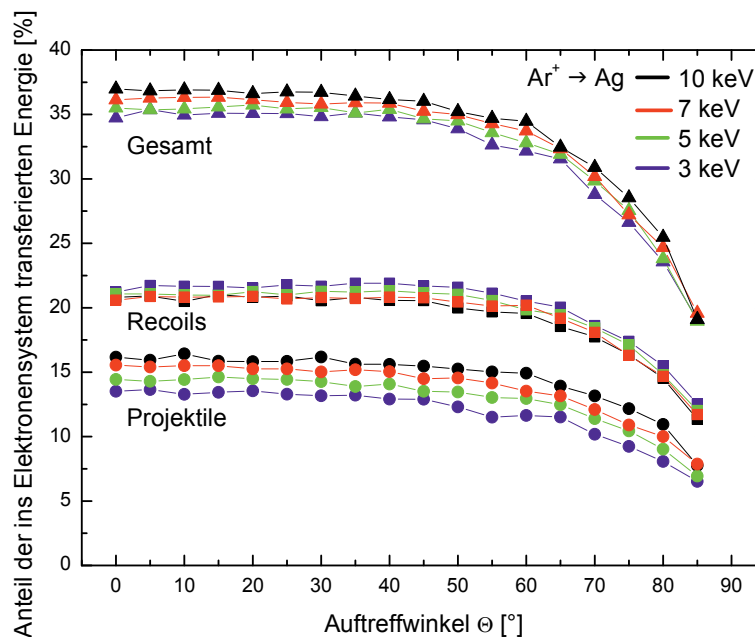


Abbildung 8.12: Prozentualer Anteil der ins Elektronensystem transferierten Primärenergie des Projektils für den Fall $\text{Ar} \rightarrow \text{Ag}$ gegen den Beschusswinkel aufgetragen. Wie zu erkennen ist, ergibt sich für alle untersuchten Energien ein ähnliches Verhalten.

8.4 Ballistischer Transport der Elektronen

8.4.1 Diskussion der Grenzfälle

In diesem Abschnitt soll versucht werden, die Beschusswinkelabhängigkeit der inneren Elektronenemission im Rahmen eines vereinfachten ballistischen Transportmodells zu verstehen. Da das Konzept der inneren Elektronenemission (Abbildung 3.1) identisch zu dem der externen Elektronenemission ist (Anregung \rightarrow Transport \rightarrow Emission), wird im Folgenden das Konzept des in Kapitel 2.3.1 vorgestellten ballistischen Transportmodells adap-

tiert. Die auf den ersten Blick größte Änderung besteht darin, dass der Transportterm in Gleichung (2.3) geändert wird. In diesem wird der Abstand zur Oberfläche x durch den Abstand vom Anregungsort des Elektrons zur inneren Barriere $(d-x)/\cos\alpha$ ersetzt. Die Größe d steht hier für die Schichtdicke der oberen Silberschicht und α für den Richtungswinkel der Elektronen relativ zur Oberflächennormalen. Anstelle von Gleichung (2.3) erhält man so für den Transportterm $p_{in}(x, \alpha)$:

$$p_{in}(x, \alpha) = \exp\left(-\frac{d-x}{\lambda \cos\alpha}\right) \quad (8.5)$$

Mithilfe von $p_{in}(x, \alpha)$ kann, basierend auf Gleichung (2.7), eine Gesetzmäßigkeit für die Bestimmung der ballistischen inneren Emission aufgestellt werden:

$$\Gamma_{IEE}^{ball} = \frac{C}{\bar{E}_{exc}} \int_0^\infty \left(\frac{dE_p}{dx} \right) \cdot p_{in}(x) dx \quad (8.6)$$

In Analogie zu Gleichung (2.7) bezeichnet die Größe C die Transmissionswahrscheinlichkeit der Elektronen über die innere Barriere und \bar{E}_{exc} die Energie, die für die Erzeugung eines heißen Elektrons aufgebracht werden muss, welches die innere Barriere überwinden kann. Die Näherungen aus Abschnitt 2.3.1 sind jedoch nicht mehr gültig, da das Projektil im Fall der inneren Emission im Bereich $0 \leq x \leq d_{Ag}$ zur Ruhe kommt. Der elektronische Energieverlust dE_p/dx ist in diesem Bereich tiefenabhängig (siehe auch Abbildung 8.10), sodass dE_p/dx nicht mehr als konstant angenommen werden kann, und Gleichung (8.6) numerisch gelöst werden muss.

Zur Lösung von Gleichung (8.6) können nun verschiedene Annahmen gemacht werden:

- In [12] wird von Baragiola für den Fall der externen Emission angenommen, dass angeregte Elektronen, welche auf dem Weg zur Oberfläche einen inelastischen Streuprozess erfahren, dabei so viel Energie verlieren, dass eine Emission (klassisch) nicht mehr möglich ist. Dies heißt in unserem Fall, dass die Elektronen, welche in der inneren Emission detektiert werden, Primärelektronen sein müssen, welche ursprünglich durch Projektile mit einem Startwinkel von α (relativ zur Oberflächennormalen) erzeugt werden und danach ohne inelastische Streuverluste (unter Vernachlässigung elastischer Streuung) das Oxidinterface erreichen.
- Weiterhin wird angenommen, dass die Anzahl angeregter Elektronen in jeder Tiefe, ungeachtet der tatsächlichen Energie von Projektil und Recoil, durch die bereits in der Beschreibung der externen Emission genutzte Beziehung $dE_p/(dx \cdot \bar{E}_{exc})$ bestimmt werden kann.
- Zuletzt wird angenommen, dass sich die Beiträge aus Projektil- und Recoilanregung in Gleichung (8.6) addieren lassen.

In Abbildung 8.13 sind nun drei Grenzfälle möglicher winkelabhängiger Verläufe der ballistischen inneren Elektronenausbeute zu sehen. Für den Fall einer isotropen Winkelverteilung der angeregten Elektronen kann im ballistischen Transportterm (Gleichung (8.5)) laut [14] der Startwinkel α analog zu Gleichung (2.3) gleich null gesetzt werden. Im Fall maximaler Anisotropie werden nur die hochangeregten Elektronen betrachtet, welche beim Stoß mit dem Projektil bzw. den Recoils den maximalen Energieübertrag erfahren. Da die innere Barriere am Ag|AlO_x-Interface eine Höhe von 3.9 eV hat, ist zu erwarten, dass nur die hochangeregten Elektronen detektiert werden können. Da diese Elektronen laut Gleichung (2.10) nur bei einem Frontalzusammenstoß angeregt werden, wird davon ausgegangen, dass sich diese hochangeregten Elektronen nach dem Stoßprozess in Richtung Θ ihres Stoßpartners bewegen.

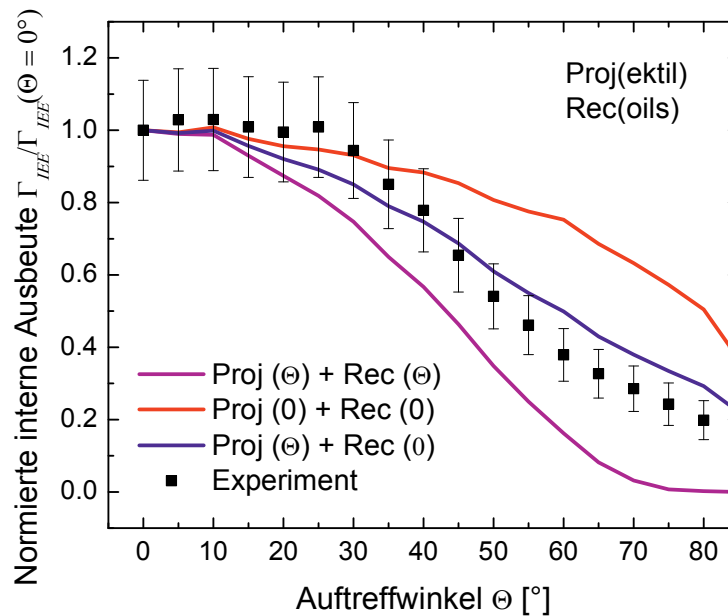


Abbildung 8.13: Winkelabhängigkeit der normierten internen Ausbeute ($10\text{-keV } \text{Ar}^+ \rightarrow \text{Ag|AlO}_x\text{|Al}$ mit $d_{\text{Ox}} = 40 \text{ nm}$) für drei verschiedene Spezialfälle. Der Wert in den Klammern beziffert jeweils den angenommenen Wert für den Richtungswinkel α der angeregten Elektronen beim Transport durch den Festkörper [126].

In der roten Kurve wird nun der Fall betrachtet, dass die Winkelverteilungen für die sowohl durch Projektil als auch durch Recoils angeregten Elektronen als isotrop angenommen werden können. Somit wird α in Gleichung (8.6) auf den Wert null gesetzt. Es fällt auf, dass durch diese Annahme der Einfluss des Beschusswinkels Θ auf die innere Ausbeute Γ_{IEE} unterschätzt wird. Der umgekehrte Extremfall ist in der violetten Kurve zu sehen. Hier wird sowohl für die Winkelverteilungen der Elektronen aus Projektil- und Recoilsanregung maximale Anisotropie angenommen, der Wert α also auf den Wert des Projektilbeschusswinkels Θ gesetzt. Auch hier kommt es zu keiner Übereinstimmung mit dem Sig-

nalverlauf der experimentellen Werte, wobei diesmal der Einfluss des Beschusswinkels überschätzt wird.

Als dritte Möglichkeit ist in blauer Farbe der bereits in Kapitel 8.3.2 angeregte Fall aufgetragen. Dabei wird angenommen, dass sich die hochangeregten Elektronen, welche vom Projektil erzeugt werden, in Richtung des Projektils bewegen, da sie in dieser Richtung den maximalen Energieübertrag erfahren. Die vom Projektil erzeugten Recoils können ihrerseits wiederum in Stoßkaskaden verwickelt werden, sodass bereits hier eine eher geringe Korrelation zwischen dem Auftreffwinkel des Projektils und der Bewegungsrichtung der Recoils zu erwarten ist. Die Winkelverteilung der durch die Recoils angeregten Elektronen wird daher als isotrop verteilt angenommen. In diesem Fall, in welchem Elektronen aus Projektil- und Recoilanregung getrennt voneinander betrachtet werden, wird die beste Übereinstimmung zwischen Modell und Experiment erzielt.

8.4.2 Diskussion des Fallbeispiels 10-keV Ar \rightarrow Ag

Auf diesen ersten Abschätzungen aufbauend soll nun untersucht werden, inwiefern die ursprüngliche Winkelverteilung der angeregten Primärelektronen Einfluss auf die qualitative Form der Beschusswinkelabhängigkeit der inneren Emission hat. Hierzu wird das eingeführte Modell wie folgt verfeinert:

- (1) Es wird berücksichtigt, dass die angeregten Elektronen durch den inelastischen Streuprozess mit einem Atom/Ion eine anfängliche Winkelverteilung besitzen.
- (2) Es wird diskutiert, inwieweit die Energie von Projektilen und Recoils ausreicht, um Leitungsbandedelektronen durch einen inelastischen Streuprozess anzuregen.
- (3) Weiterhin wird untersucht, inwieweit sich die Richtung der Projektils beim Durchqueren des Festkörpers ändert.

8.4.2.1 Einfluss der Elektronen

Um den Einfluss der Winkelverteilungen der angeregten Elektronen zu studieren und so ein genaueres Bild der ballistischen inneren Emission zu bekommen, soll das zuvor eingeführte ballistische Modell der inneren Emission um einige Annahmen erweitert werden:

- Die durch die Wechselwirkung zwischen Projektil/Recoil und Elektronen angeregten ballistischen Elektronen haben eine Winkelverteilung $G(\alpha, \bar{E}_{exc})$, welche von der Anregungsenergie $\bar{E}_{exc} = E_e - E_F$ der Elektronen abhängt.
- Basierend auf Gleichung (2.10) müssen Projektils und Recoils eine Primärenergie besitzen, welche ausreicht um ein Elektron mit der Anregungsenergie \bar{E}_{exc} anzure-

gen. Diese muss mindestens so groß wie die interne Barrierenhöhe $\Phi_e^{Ag} = 3.9$ eV sein.

- Projektile und Recoils besitzen ebenfalls eine durch Nuclear Stopping hervorgerufene Winkelverteilung.

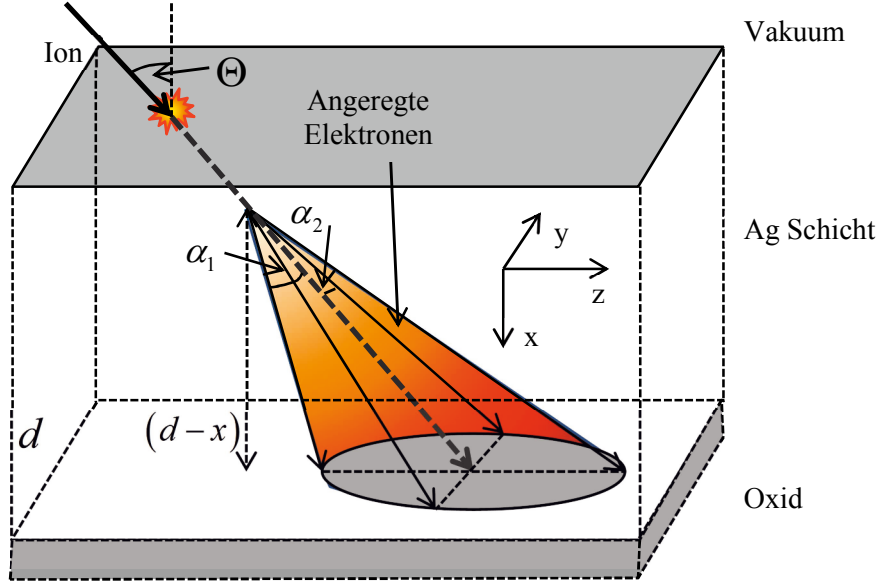


Abbildung 8.14: Im Fall anisotrop in Tiefe x angeregter Elektronen bewegen sich diese innerhalb eines Transportkegels mit den Öffnungswinkeln α_1 und α_2 in z - und y -Richtung[126].

In Abbildung 8.14 ist das Schema des erweiterten Modellansatzes abgebildet. In diesem bewegen sich die Elektronen auf dem Weg zur Oxidschicht nicht in diskrete Richtungen ($\alpha = 0^\circ$ oder $\alpha = \Theta$), sondern innerhalb eines Transportkegels (orange). Dieser Kegel wird von den Winkeln α_1 und α_2 (in z - und y -Richtung) um den Beschusswinkel der Projektile Θ zentriert aufgespannt. α_1 und α_2 skalieren hier jeweils zwischen symmetrische Grenzen $[-\alpha_{\max}, \alpha_{\max}]$, welche über die Winkelverteilungen der angeregten Elektronen bestimmt werden und abhängig vom Energieübertrag \bar{E}_{exc} bei einem Atom-Elektron-Stoß ausgerechnet werden können.

Mit dieser Modifikation ändert sich die Form des Transportterms aus Gleichung (8.5) wie folgt:

$$p_{in}(x, \Theta, \bar{E}_{exc}) = \frac{1}{N_a(\bar{E}_{exc})} \cdot \int_{-\alpha_{1,\max}(\bar{E}_{exc})}^{\alpha_{1,\max}(\bar{E}_{exc})} d\alpha_1 \int_{-\alpha_{2,\max}(\bar{E}_{exc})}^{\alpha_{2,\max}(\bar{E}_{exc})} d\alpha_2 \cdot \quad (8.7)$$

$$\cdot G(\alpha_1, \bar{E}_{exc}) G(\alpha_2, \bar{E}_{exc}) \exp\left(-\frac{d-x}{\lambda \cos(\Theta + \alpha_1) \cos(\alpha_2)}\right)$$

In dieser Gleichung bezeichnen $G(\alpha_1, \bar{E}_{exc})$ und $G(\alpha_2, \bar{E}_{exc})$ die energieabhängigen Winkelverteilungen der angeregten Elektronen in z - und y -Richtung, während N_α als Normie-

rungskonstante die Gesamtzahl aller im Anregungskegel angeregten Elektronen mit Anregungsenergie \bar{E}_{exc} darstellt.

Eine Möglichkeit, die zugehörigen Winkelverteilungen zu berechnen, stellt die quantenmechanische Streuung eines Elektrons am Projektil dar. In von J. I. Juaristi durchgeführten Rechnungen [36, 127, 128] wird hier das Projektil als Störung in dem als frei angenommenen Elektronengas der Leitungsbandelektronen aufgefasst und mithilfe der Dichtefunktionaltheorie ein effektives Streupotential zwischen Projektil und streuendem Elektron bestimmt [129]. Die Lösung der Schrödingergleichung geschieht mithilfe der Partialwellenmethode [130], durch welche die Streuamplitude und die Streuphase des gestreuten Elektrons berechnet werden können. Der differentielle Streuquerschnitt σ für die Projektil-Elektron-Wechselwirkung ist dann laut [36] in atomaren Einheiten definiert als:

$$\sigma(\beta) = \frac{1}{k_f'^2} \left| \sum_{l=0}^{\infty} (2l+1) e^{i\delta_l(k_f'^2)} \sin[\delta_l(k_f'^2)] P_l(\cos \beta) \right|^2 \quad (8.8)$$

In Gleichung (8.8) stehen β und $k_f'^2$ für den Streuwinkel im Schwerpunktsystem sowie den k -Vektor, welchen das Elektron nach dem Streuprozess im Schwerpunktsystem besitzt. Ferner bezeichnen P_l die Legendre-Polynome und $\delta_l(k_f'^2)$ die Streuphasenverschiebungen der betrachteten Energie.

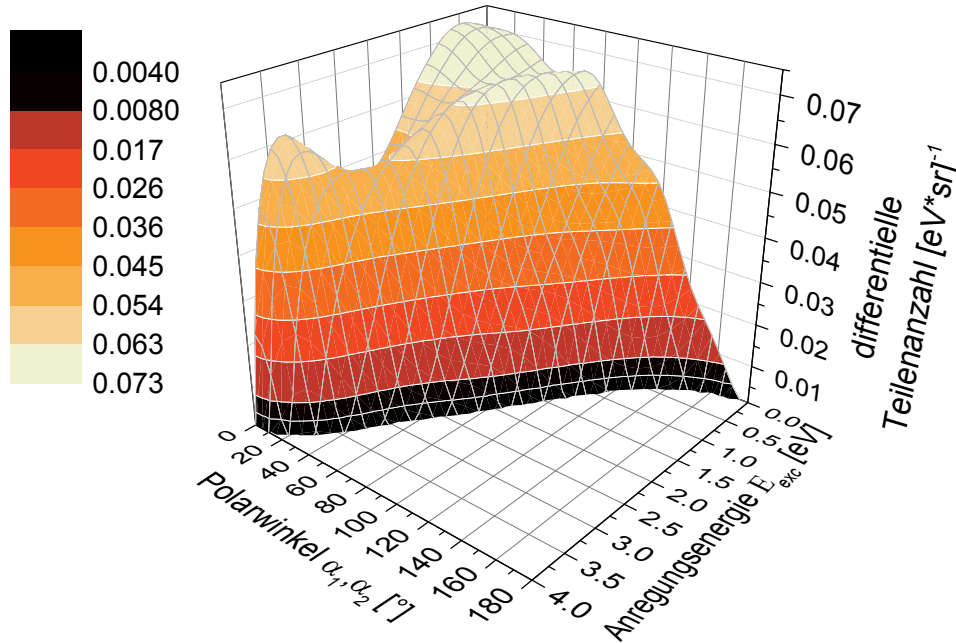


Abbildung 8.15: Wahrscheinlichkeit für den Fall 10-keV Ar \rightarrow Ag, ein Elektron mit einer Anregungsenergie $E_e - E_F$ unter einem und Polarwinkel α_1, α_2 (relativ zur Projektilflugrichtung) anzuregen. [131]

Die für uns interessanten Verteilungen wurden von J. I. Juaristi für den Fall 10-keV $\text{Ar} \rightarrow \text{Ag}$ ausgerechnet [131] und sind in Abbildung 8.15 zu finden. Wie zu erkennen ist, gibt es einen klaren Zusammenhang zwischen dem Polarwinkel und der Anregungsenergie (x-y-Ebene). Während die Anregung von Elektronen mit geringer Anregungsenergie nahezu isotrop erfolgt, werden die Elektronen im Energiebereich von 3-4 eV Anregungsenergie nur in einem Winkelbereich von 0-45° relativ zur Projektilflugrichtung angeregt. In dem für uns interessanten Bereich ab einer Anregungsenergie von 3.9 eV gibt es einen Anregungskegel mit einem Öffnungswinkel von ca. 20°, wie auch in Abbildung 8.16 anhand eines Schnittes durch Abbildung 8.15 entnommen werden kann. Ein weiteres interessantes Resultat ist die Tatsache, dass die Anzahl die angeregten Elektronen pro Anregungsenergie E_{exc} und pro Polarwinkel α keinesfalls monoton mit α und E_{exc} skaliert. Je nach Anregungsenergie kann es z. B. bei 2-3 eV passieren, dass die Mehrheit der Elektronen nicht in Richtung des Projektils, sondern unter einem Winkel von 30°-45° erzeugt werden, sich dieses bei geringeren Anregungsenergien von rund 1 eV aber wieder ändert.

Diese energieabhängigen Oszillationen beruhen auf Streuresonanzen des Zentralpotentials, welche den differentiellen Streuquerschnitt in Gleichung (8.8) maximieren und so den Beitrag der Elektronen erhöhen. Diese Streuresonanzen sind ein rein quantenmechanischer Effekt und lassen sich nicht ohne Weiteres mit semiklassischen Größen wie z. B. dem Stoßparameter verknüpfen [132].

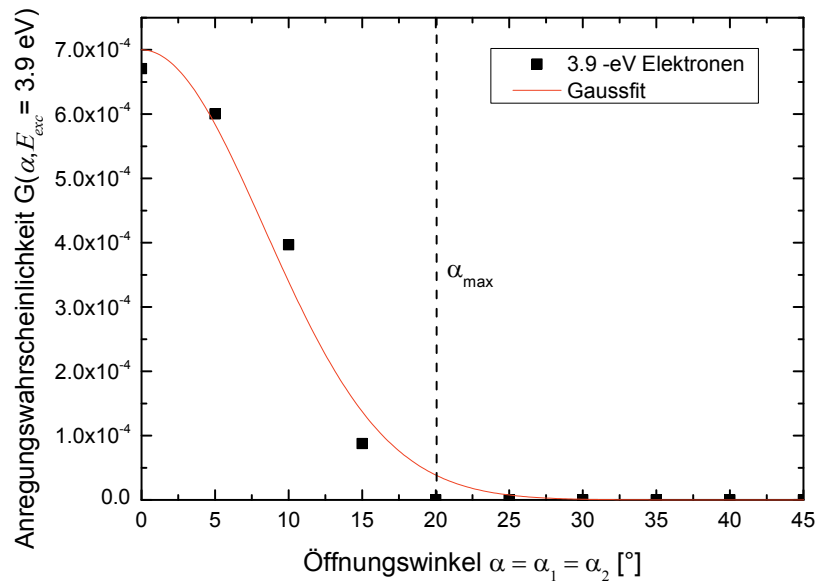


Abbildung 8.16: Aus Abbildung 8.15 extrahierte Polarwinkelabhängigkeit der differentiellen Teilchenanzahl für eine feste Anregungsenergie von 3.9 eV.

Die Abhängigkeit der Anzahl angeregter Elektronen vom Polarwinkel α wird für eine feste Anregungsenergie von 3.9 eV in Abbildung 8.16 gesondert betrachtet. Wie hier zu erkennen ist, wird das Gros der Elektronen in Richtung der Projektilflugrichtung ($\alpha = 0^\circ$) erzeugt und liefert dann mit steigendem Winkel α immer weniger Beiträge. Weiterhin ist in roter Farbe eine angepasste Gaußfunktion dargestellt, welche wir als Parametrisierung für die Winkelverteilung $G(\alpha)$ aus Gleichung (8.7) annehmen.

8.4.2.2 Einfluss der Projektile

Um den Einfluss der anisotropen Anregung der heißen Elektronen durch direkte Projektil-Elektron Stöße oder Recoil-Elektron Stöße genau abschätzen zu können, ist es wichtig, den Ort der Anregung zu kennen, und in welche Richtung sich das Projektil zu dem Zeitpunkt bewegt hat. In Abbildung 8.17 sind die für den Modellfall 10-keV $\text{Ar}^+ \rightarrow \text{Ag}|\text{AlO}_x|\text{Al}$ relevanten Parameter für die Elektronenanregung von Projektil und Recoils abgebildet.

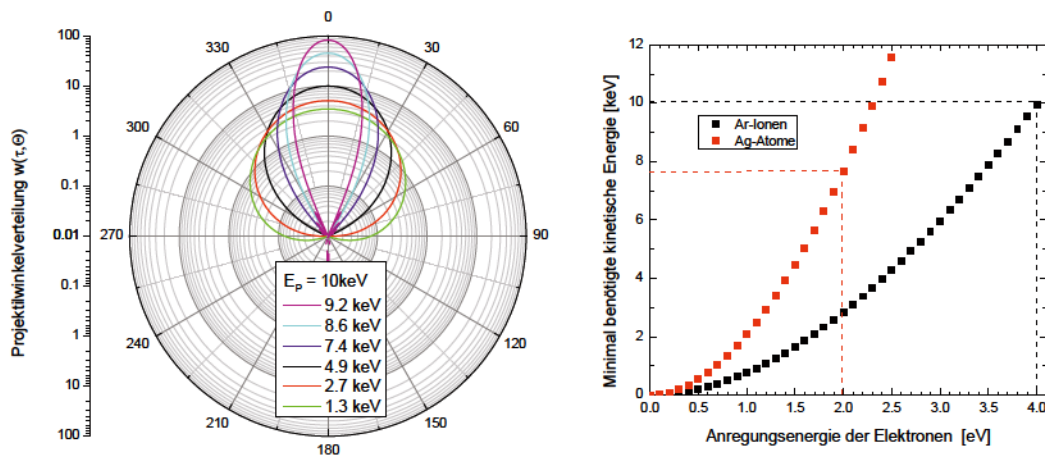


Abbildung 8.17: (Links) Verbreiterung der Winkelverteilung eines Strahls von 10-keV Argon-Ionen infolge von Nuclear Stopping Prozessen im Silberfilm (Ursprung der Verteilungen: Anhang A.3). (Rechts) Minimale Energie, welche von Projektilen (schwarz) und Recoils (rot) benötigt werden, um ein Elektron mit einer gewissen Anregungsenergie erzeugen zu können. Eingezeichnet sind die Energieschwellen für einen Primärionenstrahl von 10-keV Argon-Ionen und für die angeregten Recoils (siehe auch Gleichung (8.9)).

Im rechten Teil der Abbildung ist in schwarzer Farbe die Mindestenergie (y-Achse) eines Projektils angegeben, die es besitzen muss, um einem Elektron eine gewisse Anregungsenergie E_{exc} (x-Achse) mitzugeben. Bei einer Energie von 10 keV kann (laut Gleichung (2.10)) ein Argon-Projektil demnach maximal ein Elektron mit $E_{exc} = 4$ eV erzeugen.

Auf der rechten Seite von Abbildung 8.17 ist in roter Farbe ebenfalls abgebildet, wie viel Anregungsenergie E_{exc} ein Elektron maximal durch eine Head-On-Collision mit einem Recoil gewinnen kann, welches wiederum durch eine Head-On-Collision mit einem auf-

treffende Projektil in Bewegung versetzt wurde. Die Energie des Recoils wird hier mit Gleichung (8.9) ermittelt.

$$T_{\max} = \frac{4M_{Ar}M_{Ag}}{(M_{Ar} + M_{Ag})^2} E_p \quad (8.9)$$

Aufgrund der unterschiedlichen Massen von Argon ($M_{Ar} = 40$ amu) und Silber ($M_{Ag} = 108$ amu) kann nur ein Bruchteil der Anfangsenergie E_p des Argon-Projektils übertragen werden, sodass die Recoils eine geringere kinetische Energie aufweisen. Die Recoilatome werden vor dem Stoß als in Ruhe angenommen und die Energie, die nötig ist, um das Recoil von seinem Gitterplatz zu lösen, wird vernachlässigt. Die gestrichelte rote Linie grenzt den Bereich ein, welcher für einen Einschlag eines 10-keV Argon-Projektils möglich ist. Aufgrund von Gleichung (8.9) kann ein Argon-Projektil mit einer kinetischen Energie von 10 keV maximal ein Recoil einer Energie von 7.9 keV erzeugen. Dieses wiederum kann mit dieser Energie maximal ein Elektron von 2 eV anregen, sodass bei einer Barrierenhöhe von $\Phi_e^{Ag} = 3.9$ eV die von den Recoils durch Electronic Friction angeregten Elektronen voraussichtlich nicht zur inneren Ausbeute beitragen werden.

Alle Elektronen, welche nach ballistischem Transport die Barriere überwinden können, müssen demnach vom Projektil kommen. Zur Erzeugung eines 3.9-eV Elektrons benötigt ein 10-keV Argon-Projektil jedoch 9.5 keV, sodass die Anregung voraussichtlich direkt an der Oberfläche geschehen wird.

Die linke Seite von Abbildung 8.17 skizziert die Verbreitung der Winkelverteilung eines unter einem Winkel von Θ auf die Oberfläche treffenden Strahls aus Argon-Projektilen. Diese Verteilungen wurden basierend auf einer Veröffentlichung von Biersack [133] berechnet, in welcher die sequenzielle Richtungsänderung eines Projektils beim Eintritt in den Festkörper mithilfe eines Diffusionsmodells beschrieben wurde⁹. Die wiederholten Stöße des Projektils mit den Silberatomen führen zu Abweichungen der Bewegungsrichtung, sodass die anfänglich anisotrope Winkelverteilung der Projektile (um den Auftreffwinkel Θ) mit zunehmender Eindringtiefe immer isotroper wird. Wie in Abbildung 8.17 zu sehen ist, wird die anfänglich anisotrope Winkelverteilung der Projektile (um den Auftreffwinkel Θ) mit wachsendem Energieverlust (die Farben bezeichnen die Restenergie des Projektils) immer isotroper.

In unserem Fall (10-keV Ar^+) geschieht die Anregung dank der hohen Energieschwelle von $E_{th} = 9.5$ keV direkt an der Oberfläche ($x = 0$), da das Projektil beim ersten Stoß mit einem Silberatom voraussichtlich im Mittel so viel Energie verliert, dass eine Anregung

⁹ Nähere Details zu der Physik dieses Modells ist in Anhang A.3 zu finden

eines 3.9-eV Elektrons nicht mehr möglich ist. In Gleichung (8.6) kann somit durch das Einführen einer Deltafunktion $\delta(x)$ die Integration über x aufgehoben werden und die mit SRIM berechneten Werte für $dE_p/dx|_e$ an der Oberfläche eingesetzt werden.

8.4.2.3 Bestimmung der normierten Ausbeute

Mithilfe der Erkenntnisse aus den Abschnitten 8.4.2.1 und 8.4.2.2 ist es nun basierend auf den Gleichungen (8.6) & (8.7) möglich, die (neue) innere Elektronenausbeute zu bestimmen. Diese ist zusammen mit den aus Abbildung 8.13 entnommenen Daten auf senkrechten Projektileinschlag normiert in Abbildung 8.18 aufgetragen.

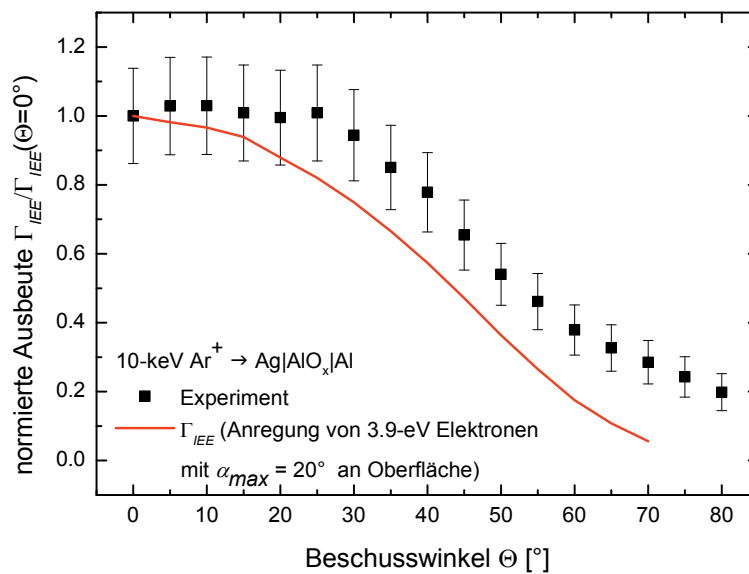


Abbildung 8.18: Vergleich der Winkelabhängigkeit der internen Ausbeute von Experiment (Abbildung 8.13) und in Abschnitt 8.4.2.1 erarbeitetem ballistischem Modell der angeregten Elektronen.

Wie zu erkennen ist, ergeben sich ähnliche Kurvenverläufe für wachsenden Beschusswinkel. Es ist im Rahmen der Modellannahmen zwar nicht möglich, das Plateau zwischen $\Theta = 0-30^\circ$ zu erklären, das Abklingen des Signals für zunehmende Beschusswinkel wird hingegen reproduziert. Die Abweichungen vom Experiment kommen daher, dass keine Elektron-Elektron-Wechselwirkungen im Modell enthalten sind, sich die Anregung komplett auf die Oberflächenregion begrenzt und die Anregung von Recoils vernachlässigt wird.

8.4.3 Allgemeiner Ansatz

In diesem Abschnitt soll ein allgemeiner Ansatz, die Beschusswinkelabhängigkeit der inneren Emission zu erklären, vorgestellt werden, welcher neben Ergebnissen aus SRIM auch Resultate unserer Arbeitsgruppen-internen Modellierung beinhaltet.

8.4.3.1 Anzahl der angeregten Elektronen

Bisher wurde die Anzahl der angeregten Elektronen $N(x)dx$ durch den Quotienten aus dem elektronischen Energieverlust $dE_p/dx|_e$ ausgedrückt, welcher durch eine mittlere Anregungsenergie \bar{E}_{exc} dividiert wurde (siehe auch Gleichungen (2.6) & (2.7)). Da die Größe $dE_p/dx|_e$ aus SRIM übernommen wurde, gehen dort nur die Energieverluste ein, welche von Projektil und Recoils durch einen direkten Stoß (Electronic Friction) mit Valenzelektronen an das Elektronensystem abgegeben werden.

In einem neuen Ansatz wird die Elektronenanzahl aus MD-Simulationen gewonnenen, welche neben Electronic Friction auch Electron Promotion als Anregungsprozess für heiße Elektronen aufweisen. Elektronen aus Promotion - Prozessen weisen laut Kovacs [17] im Laborsystem eine leichte Anisotropie auf, die allerdings schwächer ausgeprägt ist, als die der direkten Stoßanregung. In Abbildung 8.8 ist hierzu der zeitabhängige Verlauf der maximalen Elektronentemperatur T_e an der Oberfläche für den Fall 5-keV Ag \rightarrow Ag [125] für verschiedene Beschusswinkel aufgetragen. Wie zu erkennen ist, bleibt der Absolutwert von T_e an der Oberfläche für ansteigenden Beschusswinkel Θ in etwa gleich, die zeitliche Dauer vor dem Abklingen des Wertes hingegen nimmt in etwa mit $1/\cos(\Theta)$ zu. Aufgrund der verlängerten Dauer des Temperaturpeaks sollte die Anzahl der angeregten Elektronen an der Oberfläche somit ebenfalls mit $1/\cos(\Theta)$ zunehmen, was in Übereinstimmung mit den Experimenten der externen Emission ist (siehe Gleichung (6.7)). Da mit wachsendem Beschusswinkel die Reflexionswahrscheinlichkeit der Projektile erhöht wird, muss die aus den MD-Simulationen gewonnene Anzahl der angeregten Elektronen zusätzlich noch mit der Eindringwahrscheinlichkeit P_{EW} aus Abbildung 8.9 gewichtet werden.

Gleichung (8.6) wird somit wie folgt geändert:

$$\left. \frac{dE_p}{dx} \right|_e (\Theta) \cdot \frac{1}{\bar{E}_{exc}} \rightarrow N(T_e)|_{x=0} \cdot \frac{1}{\cos(\Theta)} \cdot P_{EW}(\Theta) \quad (8.10)$$

8.4.3.2 Verteilung der angeregten Elektronen

Eine weitere Änderung betrifft die Anregungswinkelverteilung $G(\alpha, \bar{E}_{exc})$ im Transportterm in Gleichung (8.7). Während diese bisher für den Spezialfall heißer Elektronen mit einer Anregungsenergie von $\bar{E}_{exc} = 3.9$ eV beschränkt betrachtet wurde (siehe Abbildung 8.16), soll nun in einem hypothetischen Fall die Form von $G(\alpha, E_{exc})$ im Folgenden unabhängig von E_{exc} gezielt variiert und der Einfluss auf die Beschusswinkelabhängigkeit der inneren Ausbeute $\Gamma_{IEE}(\Theta)$ untersucht werden.

In Abbildung 8.19 sind Winkelverteilungen für feste Anregungsenergien zu sehen, welche für Anregungsenergien bis hinunter zur Barrierenhöhe am Al|AlO_x-Interface dargestellt werden. Aus diesen Daten können zwei mögliche Grundformen für die Winkelverteilungen $G(\alpha)$ abgeleitet werden. Zum gibt es eine Funktion $G_F(\alpha)$, welche bei $\alpha = 0^\circ$ ihren maximalen Wert aufweist und dann mit zunehmendem α abnimmt. Zum anderen bildet sich eine Funktion $G_G(\alpha)$ heraus, welche bei $\alpha = 0^\circ$ ein lokales Minimum aufweist, für wachsende α dann auf ein globales Maximum ansteigt um danach auf null abzuklingen.

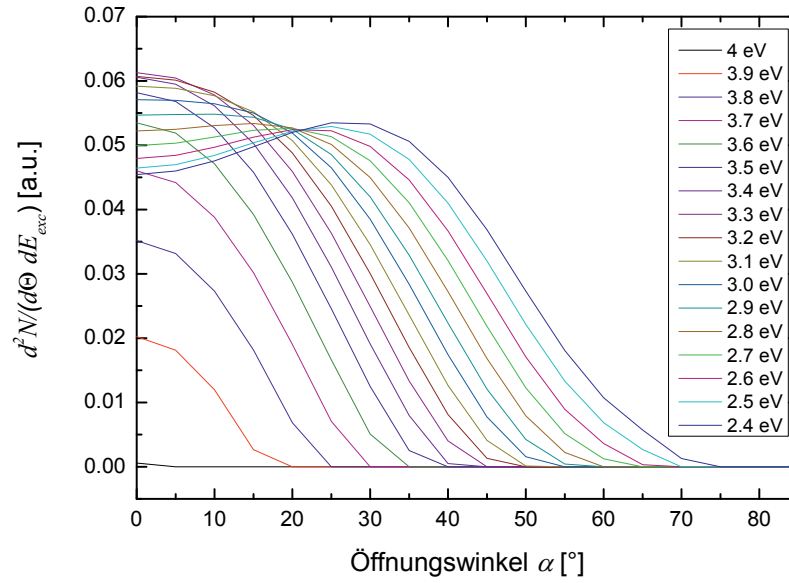


Abbildung 8.19: Aus Abbildung 8.15 extrahierte Winkelverteilungen für feste Anregungsenergien E_{exc} im Fall 10-keV Ar \rightarrow Ag. Das untere Limit für E_{exc} wird hier durch den Wert der Barriere am Al|AlO_x-Interface festgelegt.

$G_F(\alpha)$ und $G_G(\alpha)$ sind hier definiert wie folgt:

$$G_F(\alpha) = A \cdot \left[\frac{1}{\exp\left(\frac{\alpha - \alpha_{Shift}}{w}\right) + 1} \right] \cdot \left[\frac{1}{\exp\left(-\frac{\alpha + \alpha_{Shift}}{w}\right) + 1} \right] \quad (8.11)$$

$$G_G(\alpha) = \frac{A}{w\sqrt{1/2 \cdot \pi}} \cdot \left(\exp\left(-\frac{2 \cdot (\alpha + \alpha_{Shift})^2}{w^2}\right) + \exp\left(-\frac{2 \cdot (\alpha - \alpha_{Shift})^2}{w^2}\right) \right) \quad (8.12)$$

In Gleichungen (8.11) & (8.12) bezeichnet w die Stärke, mit der die Winkelverteilung abnimmt, während α_{Shift} die Verschiebung des Abklingpunkts (in Gleichung (8.11)) bzw. die Position des globalen Maximums (in Gleichung (8.12)) angibt.

Um den Transportterm p_{in} für verschiedene Kombinationen von α_{Shift} und w zu berechnen, werden Gleichungen (8.11) und (8.12) in Gleichung (8.7) eingesetzt und danach numerisch integriert. Da es im Fall der α_I -Integration durch die Verkippung um den Auftreffwinkel Θ dazu kommen kann, dass Teile von G_F oder G_G in Richtung der Oberfläche gerichtet sind, werden diese durch eine Verschiebung des Integrationsbereiches um Θ herausgefiltert. Für die Integrationsgrenzen ergibt sich demnach:

$$\left. \begin{aligned} -\alpha_{\max} \leq \alpha_1 \leq \alpha_{\max} \\ -\alpha_{\max} \leq \alpha_2 \leq \alpha_{\max} \end{aligned} \right\} \rightarrow \begin{cases} -90^\circ - \Theta \leq \alpha_1 \leq 90^\circ - \Theta \\ -90^\circ \leq \alpha_2 \leq 90^\circ \end{cases} \quad (8.13)$$

8.4.3.3 Bestimmung der normierten Ausbeute

Mit den Erkenntnissen aus den Kapiteln 8.4.3.1 und 8.4.3.2 ist es nun möglich, die (normierte) innere Ausbeute $\Gamma_{IEE}/\Gamma_{IEE}(\Theta = 0^\circ)$ für verschiedene Winkelverteilungen $G_F(\alpha)$ und $G_G(\alpha)$ für eine Auswahl von (w, α_{Shift}) -Werten zu berechnen. Hierzu werden die Rechnungen für mehrere hundert Kombinationen von (w, α_{Shift}) -Werten durchgeführt und die Resultate ausgewertet.

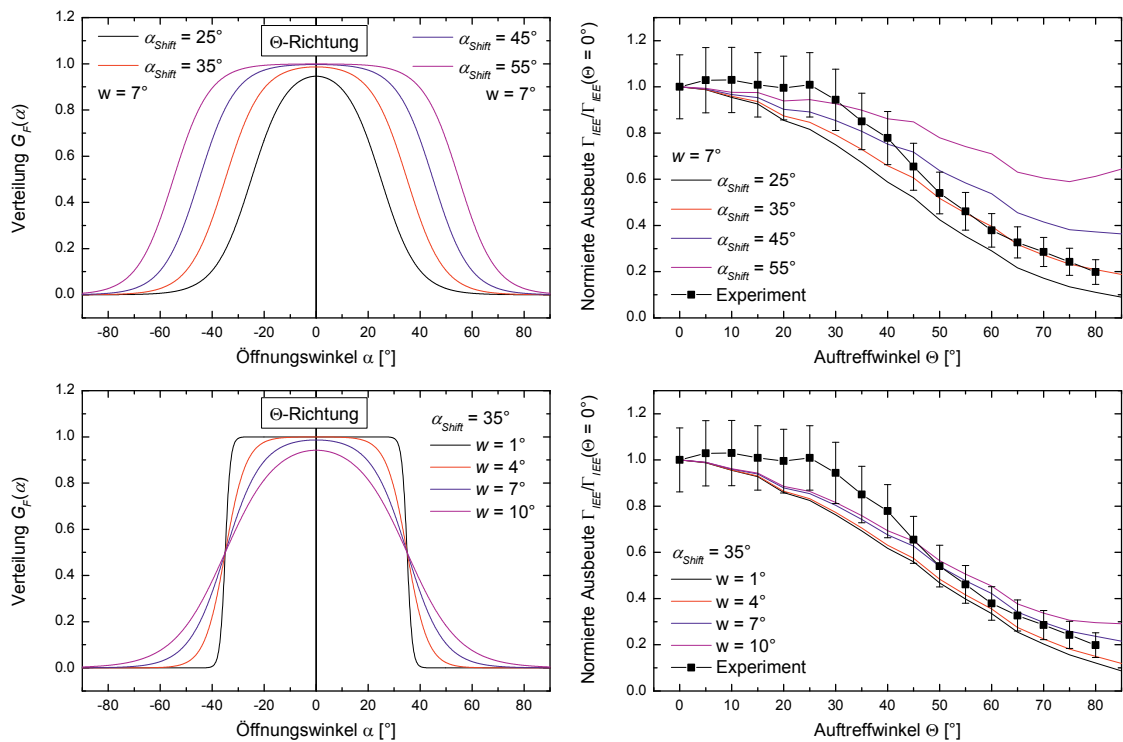


Abbildung 8.20: Gegenüberstellung der Anregungsverteilungen G_F (links) mit den dazugehörigen berechneten (normierten) inneren Ausbeuten $\Gamma_{IEE}/\Gamma_{IEE}(\Theta = 0^\circ)$ (rechts). In der oberen Hälfte wird der Parameter w konstant gelassen und α_{Shift} variiert, in der unteren Hälfte ist es andersherum.

In Abbildung 8.20 sind eine Auswahl an Ergebnissen für die Anregungswinkelverteilungen $G_F(\alpha)$ zu sehen. Auf der linken Seite sind die für die Berechnung der normierten Ausbeute verwendeten Winkelverteilungen aufgetragen, wohingegen auf der rechten Seite die normierten inneren Ausbeuten zu sehen sind. In der gezeigten Abbildung ist zu erkennen, dass sowohl eine Erhöhung von w als auch von α_{Shift} zu einer Abflachung der beschusswinkelabhängigen Ausbeute führt. Der Einfluss beider Parameter auf die Form der inneren Ausbeute scheint hier ähnlicher Natur zu sein. Die beste Übereinstimmung des Modells mit den Experimenten wird hier bei einem Wert von $\alpha_{Shift} = 35^\circ$ erzielt. Auffallend hierbei ist, dass bei dem Wert $\alpha_{Shift} = 35^\circ$ sowohl die normierte Ausbeute (in Abhängigkeit von Θ) als auch die Anregungswinkelverteilung (in Abhängigkeit von α) für Winkel größer als 35° abknicken.

Obwohl eine gute Übereinstimmung für den Winkelbereich $\Theta = 40-85^\circ$ erzielt wird, ist es jedoch nicht möglich, das in der normierten inneren Ausbeute beobachtete Plateau zwischen $\Theta = 0-30^\circ$ zu reproduzieren.

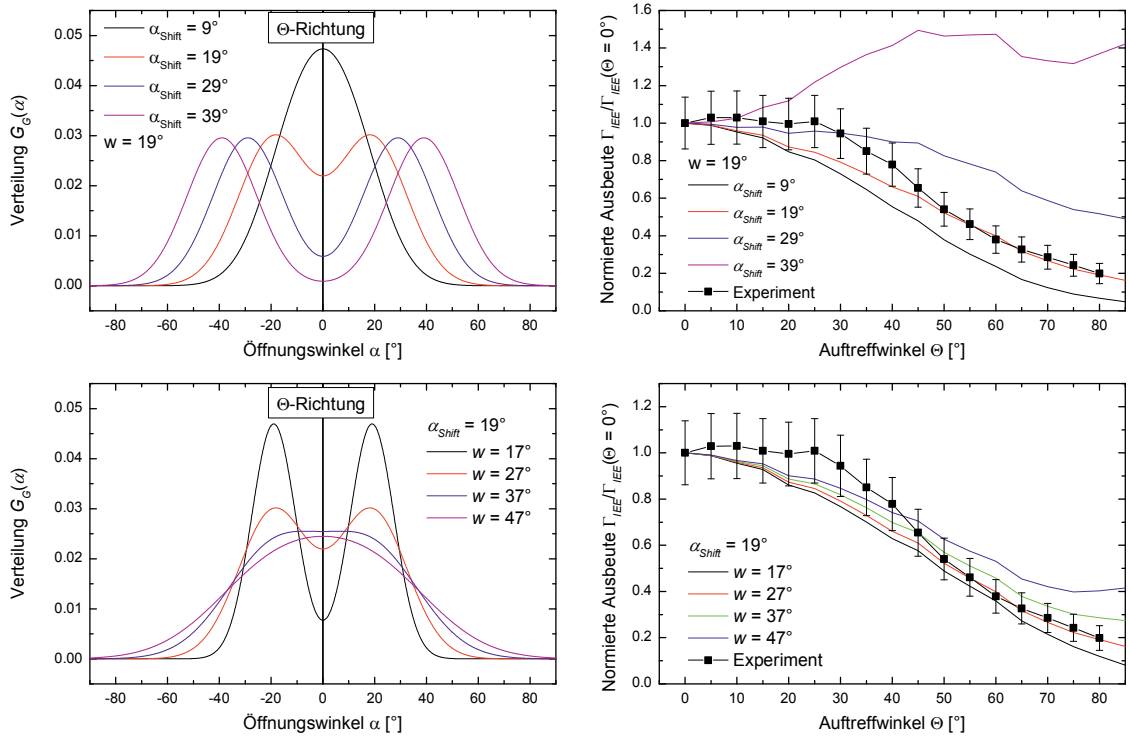


Abbildung 8.21: Gegenüberstellung der Anregungsverteilungen G_G (links) mit den dazugehörigen berechneten (normierten) inneren Ausbeuten $\Gamma_{IEE}/\Gamma_{IEE}(\Theta = 0^\circ)$ (rechts). In der oberen Hälfte wird der Parameter w konstant gelassen und α_{Shift} variiert, in der unteren Hälfte ist es andersherum.

In Abbildung 8.21 ist der Einfluss der Anregungsverteilung $G_G(\alpha)$ für eine Auswahl an Wertepaaren (w, α_{Shift}) zu sehen. Auch hier sind in der linken Bildhälfte die Anregungswinkelverteilungen abgebildet, während in der rechten Bildhälfte die dazu gehörenden berech-

neten (normierten) inneren Ausbeuten aufgetragen sind. Wie aus den oberen beiden Diagrammen der Abbildung 8.21 hervorgeht, ist der Einfluss von α_{Shift} viel größer als der Einfluss bei $G_F(\alpha)$, da hier ab einem Winkel von $\alpha_{Shift} = 38^\circ$ (hier nicht gezeigt) sich das beschusswinkelabhängige Verhalten der inneren Ausbeute invertiert. Die Lage der Maxima in $G_G(\alpha)$ scheint somit einen direkten Einfluss auf das Abklingverhalten der inneren Ausbeute zu haben. Der Einfluss der Varianz w der beiden Gaußfunktionen scheint hingegen wiederum eher gering zu sein.

Obwohl es auch mit $G_G(\alpha)$ möglich ist, den Rückgang der inneren Ausbeute Γ_{IEE} für Winkel größer als $\Theta > 40^\circ$ zu beschreiben, so scheint jedoch auch mit dem Ansatz $G_G(\alpha)$ keine Beschreibung des Plateaus zwischen $\Theta = 0-30^\circ$ möglich zu sein.

Zusammenfassend werden nachfolgend in Abbildung 8.22 die Anregungsverteilungen $G_F(\alpha)$ und $G_G(\alpha)$ präsentiert, bei welchen die Übereinstimmung mit den experimentellen Daten am besten gegeben ist.

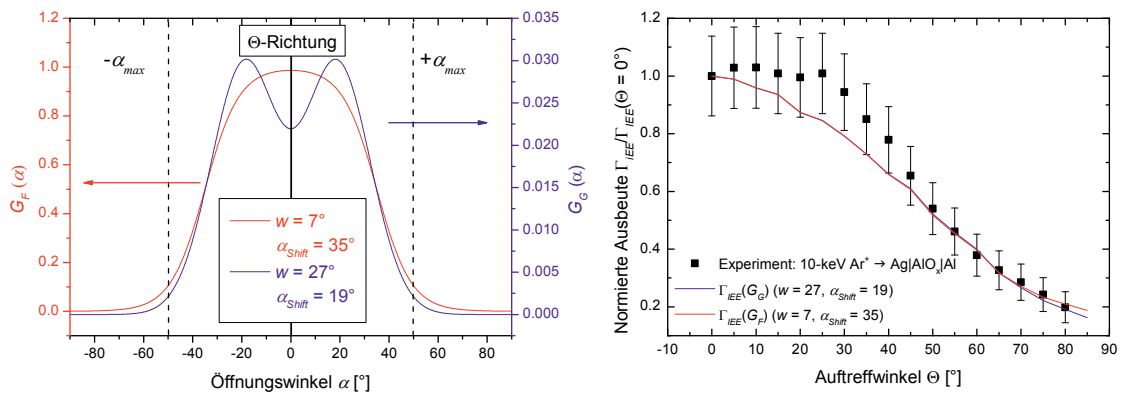


Abbildung 8.22: Auf der linken Seite sind Anregungswinkelverteilungen G_F (rot) und G_G (blau) zu sehen, welche die größtmögliche (qualitative) Übereinstimmung mit der experimentell beobachteten beschusswinkelabhängigen inneren Ausbeute aufweisen.

Es fällt auf, dass (im rechten Teil der Abbildung) die berechneten (normierten) inneren Ausbeuten für $G_F(\alpha)$ (Rot) und $G_G(\alpha)$ (Blau) zu nahezu identischen beschusswinkelabhängigkeiten führen, obwohl sich die Verteilungen im Bereich $\alpha = -35^\circ$ bis $\alpha = 35^\circ$ gravierend unterscheiden. Dieser Unterschied von $G_F(\alpha)$ und $G_G(\alpha)$ bei kleinen Öffnungswinkeln scheint jedoch keinen Effekt auf die berechnete Ausbeute zu haben. Interessanterweise scheint die Form der Flanken des Öffnungskegels mit $\alpha_{max} \approx \pm 50^\circ$ der maßgebliche Faktor bei der Beschreibung der beschusswinkelabhängigkeit der inneren Elektronenemission zu sein.

Als wesentliches Resultat kann an dieser Stelle festgehalten werden, dass die experimentell gemessene beschusswinkelabhängige Abnahme der Elektronenausbeute für beschusswin-

kel größer als $\Theta = 45^\circ$ qualitativ reproduziert werden kann, wenn die Anregungswinkelverteilung $G(\alpha)$ zwischen $\alpha = 35^\circ$ und $\alpha = 60^\circ$ um eine Größenordnung abfällt. Im Rahmen dieses Modells mit einer festen Anregungsverteilung ist es jedoch nach wie vor nicht möglich, das Plateau der experimentellen Daten zwischen $\Theta = 0 \dots 30^\circ$ zu erklären.

8.4.3.4 Diskussion weiterer Faktoren

Den bisherigen Modellrechnungen lagen einige Vereinfachungen zugrunde, welche im Folgenden näher diskutiert und vorgestellt werden sollen:

1. Die Transmission durch die Barriere wurde unabhängig von den Winkeln Θ und α als konstant angenommen, da allen angeregten Elektronen eine mittlere Anregungsenergie E_{exc} zugeordnet wurde.
2. Elektronen aus anderen Anregungsprozessen wie Electron Promotion oder Plasmonen wurden nicht eigenständig in das Modell aufgenommen.
3. Die Abklinglänge λ ist für alle betrachteten Elektronen identisch. Außerdem wird angenommen, dass gestreute Elektronen nicht zur Ausbeute beitragen.
4. Es werden nur Elektronen betrachtet, welche an der Oberfläche erzeugt werden.

8.4.3.4.1 Transmission und Energieverteilung angeregter Elektronen

Bisher wurde angenommen, dass sich die Anregungswinkelverteilung $G(\alpha)$ durch eine einzelne Funktion beschreiben lässt, welche zu einer effektiven Anregungsenergie \bar{E}_{exc} gehört. Wie aber bereits schon in Abbildung 8.15 gezeigt, werden bei der Wechselwirkung von Argon-Projektilen mit Valenzelektronen Elektronen mit unterschiedlichen Anregungsenergien $i \cdot \Delta E = E_i - E_F$ und -winkelverteilungen $G_i(\alpha, i \cdot \Delta E)$ erzeugt, wobei ΔE die Diskretisierung der Anregungsenergie darstellt (z. B. $\Delta E = 0.1$ eV in Abbildung 8.19). Es ist somit zu erwarten, dass die effektive Anregungswinkelverteilung $G(\alpha)$ aus einer Superposition der einzelnen energieabhängigen Anregungswinkelverteilungen $G(\alpha, i \cdot \Delta E)$ hervorgeht, bei welcher die einzelnen Verteilungen mit der Transmissionswahrscheinlichkeit $Tr(i, \Theta, \alpha_1, \alpha_2)$ gewichtet werden:

$$C \cdot G(\alpha_1, \alpha_2) \approx \sum_i Tr(i, \Theta, \alpha_1, \alpha_2) \cdot G(\alpha_1, i \cdot \Delta E) \cdot G(\alpha_2, i \cdot \Delta E) \quad (8.14)$$

Da in unserem Modell nur Elektronen das Oxidinterface erreichen, welche nicht gestreut werden, ist die Anregungsenergie der Elektronen dieselbe Energie, mit welcher die Elektronen die Barriere erreichen. In die Transmissionswahrscheinlichkeit $Tr(i, \Theta, \alpha_1, \alpha_2)$ gehen somit dieselben Werte für $i, \alpha_1, \alpha_2, \Theta$ ein wie in die Winkelverteilungen, sodass das Elektron mit der Anregungsenergie $i \cdot \Delta E$ unter dem Winkel $(\alpha_1 + \Theta, \alpha_2)$ auf die Barriere auftrifft.

Im klassischen Bild (unter Vernachlässigung von Löcher- und Tunnelbeiträgen) ist die Transmissionswahrscheinlichkeit $Tr(i, \vartheta)$ durch eine Potentialstufe laut [17, 130] (leicht modifiziert) definiert als:

$$Tr(i, \vartheta) = \begin{cases} \frac{4 \sqrt{1 - \frac{E_F + \Phi_e^{Ag}}{(E_F + i \cdot \Delta E) \cos^2 \vartheta}}}{\left[1 + \sqrt{1 - \frac{E_F + \Phi_e^{Ag}}{(E_F + i \cdot \Delta E) \cos^2 \vartheta}}\right]^2}, & \text{für } \frac{E_F + \Phi_e^{Ag}}{(E_F + i \cdot \Delta E) \cos^2 \vartheta} < 1 \\ 0, & \text{sonst} \end{cases} \quad (8.15)$$

Der Winkel ϑ stellt hier (wie bereits in Kapitel 3 eingeführt) den Auftreffwinkel der Elektronen (relativ zur Flächennormalen) auf die (als Potentialstufe wirkende) Barriere dar. Um ϑ in Relation zu den bekannten Größen Θ , α_1 und α_2 zu setzen, wird nachfolgend das Skalarprodukt aus dem Richtungsvektors $\vec{r}(\alpha_1, \alpha_2, \Theta)$ des angeregten Elektrons und der Flächennormalen \vec{n} der Oxidebene gebildet:

$$\vec{r}(\alpha_1, \alpha_2, \Theta) = \begin{pmatrix} \sin(\Theta + \alpha_1) \\ \sin(\alpha_2) \\ \cos(\Theta + \alpha_1) \cos(\alpha_2) \end{pmatrix} \quad \& \quad \vec{n} = \begin{pmatrix} 0 \\ 0 \\ 1 \end{pmatrix}$$

$$\rightarrow \vartheta(\Theta, \alpha_1, \alpha_2) = \arccos \left(\frac{\cos(\Theta + \alpha_1) \cos(\alpha_2)}{\sqrt{\sin^2(\Theta + \alpha_1) + \sin^2(\alpha_2) + \cos^2(\Theta + \alpha_1) \cos^2(\alpha_2)}} \right) \quad (8.16)$$

Durch Einsetzen von Gleichung (8.16) in Gleichung (8.15) ist es möglich, die Größe $Tr(i, \vartheta)$ mit $\vartheta = \vartheta(\Theta, \alpha_1, \alpha_2)$ auszuwerten, sodass diese wiederum in Gleichung (8.14) substituiert werden kann.

In Abbildung 8.23 ist $Tr(i, \vartheta)$ für verschiedene Anregungsenergien $i \cdot \Delta E = E_i - E_F$ gegen den Auftreffwinkel ϑ auf die Oxidbarriere aufgetragen. Wie zu erkennen ist, zeigt die Transmission $Tr(i, \vartheta)$ ein ähnliches Verhalten wie die Heaviside-Funktion. Für kleine Auftreffwinkel ist sie in der Regel konstant und knickt dann (in Abhängigkeit von $i \cdot \Delta E$) für größere Winkel ab, da die Senkrechtkomponente der Elektronenenergie kleiner als die Barrierenhöhe wird. Ab diesem Bereich setzt im Fall der inneren Emission der Tunnelprozess durch die Bandlücke des Aluminiumoxids ein, wodurch die Transmission um mehrere Größenordnungen abnimmt (siehe auch Abbildung 3.14). Wie außerdem aus Abbildung 8.23 hervorgeht, können die von 10-keV $\text{Ar} \rightarrow \text{Ag}$ angeregten heißen Elektronen mit dem maximalen Energieübertrag (Gleichung (2.10)) von 4 eV (im klassischen Fall) die Barriere nur dann passieren, wenn sie diese in einem Winkelbereich von $\vartheta = 0-5^\circ$ relativ zur Flächennormalen erreichen. Daraus folgend sollte eigentlich die gemessene innere Ausbeute

für streifenden Einfall entweder komplett verschwinden oder aber um etliche Größenordnungen abnehmen.

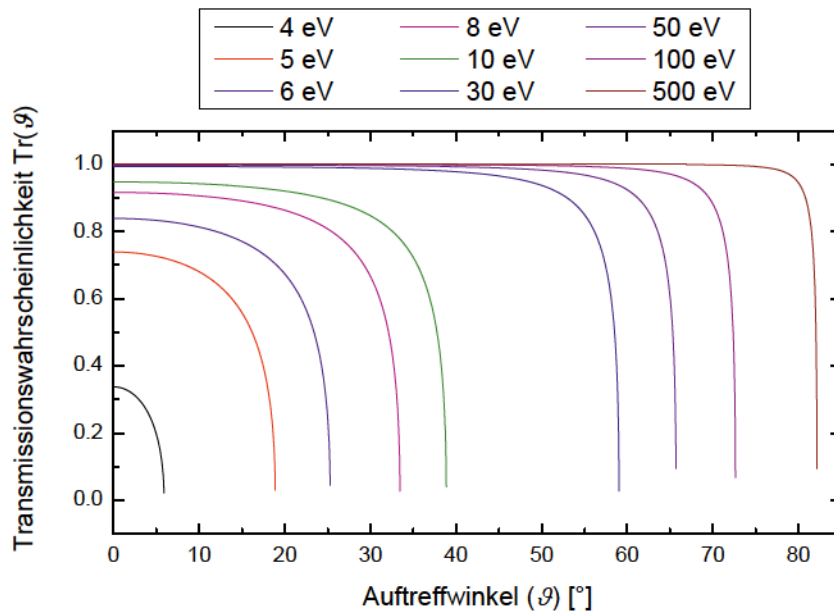


Abbildung 8.23: Transmissionskoeffizient $Tr(\theta)$ gegen den Auftreffwinkel θ für verschiedene Anregungsenergien $i\Delta E$.

Stattdessen wird jedoch nur eine Abnahme um knapp eine Größenordnung beobachtet, sodass es weitere Effekte geben muss.

Ein großer Makel des bisher erarbeiteten Modells besteht bislang darin, dass dieses aufgrund der Barrierehöhe von $\Phi_e^{Ag} = 3.9 \text{ eV}$ klassisch nur für Argon-Projektile mit einer kinetischen Energie von mindestens 10 keV gültig ist und eine Beschreibung der inneren Emission für Projektile mit weniger Energien fehlschlägt.

8.4.3.4.2 Anregungsprozesse für Elektronen mit höherer Anregungsenergie

Die bisherige Diskussion konzentrierte sich allerdings auf Elektronen aus direkter Projektil-Elektronen-Wechselwirkung und Elektronen aus anderen Anregungsmechanismen wurden vernachlässigt (Kapitel 8.4.2). In Kapitel 8.4.3 wurden darüber hinaus Elektronen aus Electron Promotion Prozessen zugelassen, diese aber nicht explizit von heißen Elektronen aus Electronic Friction Prozessen abgegrenzt.

Es gibt weitere Beobachtungen von Baragiola [13], welcher nach dem Beschuss einer Goldoberfläche mit Argon-Ionen im keV-Bereich emittierte Elektronen detektierte, welche eine Energieverteilung mit Elektronenenergien von bis zu 40 % der Projektilenergie auf-

wiesen. Es gibt drei mögliche Theorien, diese anfangs kontrovers diskutierten Messungen [13, 134, 135] zu verstehen:

- Von Baragiola [13] selber wurde ein Multi-Elektronenprozess vorgeschlagen, welcher dem Prozess der Electron Promotion stark ähnelt. Hierbei werden die die Atome umgebenen Elektronenwolken bei einem harten Stoß zwischen Projektil und Recoil im Kollektiv angeregt, wodurch eine Art Plasmon erzeugt wird. Diese gesamte Anregungsenergie kann mit einer gewissen Wahrscheinlichkeit durch die Emission eines einzelnen hochangeregten Elektrons abgebaut werden [136], welches dann eine Anregungsenergie im keV-Bereich aufweisen kann.
- Eine andere Interpretation wird von Jakas [137] geliefert, welcher die hohe Anregungsenergie einiger weniger Elektronen mithilfe des Fermi-Shuttle Mechanismus [138] beschreibt. In diesem von Fermi für die Astrophysik entwickelten Modell wird ein leichter Himmelskörper im Potential zweier schweren Massen eingefangen und umkreist diese, bis er genug Energie absorbiert hat um dem Potential zu entkommen, oder sich die beiden Massen voneinander entfernen und ihn so freigeben. Laut Jakas kann dieses Modell auch für ein Elektron angewandt werden, welches sich frei durch den Festkörper bewegt und dann in dem abgeschirmten Coulombfeld zweier stoßender Atome eingefangen wird. Auch hier absorbiert das Elektron solange Energie von den Stoßpartnern, bis es genug Energie hat, um auszubrechen oder sich beide Atome nach dem Stoß wieder voneinander entfernen und das Wechselwirkungspotential schwächer wird.
- Ein dritter Ansatz zur Erklärung kommt von Falcone und Sroubek [139], welche Energieverteilungen von Elektronen berechneten, die bei einem binären Stoß zweier Aluminiumatome erzeugt wurden. Hier zeigte sich, dass die Berücksichtigung von kernnahen Elektronen in tief liegenden Energieniveaus zu schnellen hochangeregten Elektronen führen kann.

Es ist davon auszugehen, dass diese hochangeregten Elektronen ihrerseits wiederum durch inelastische Prozesse Sekundärelektronen anregen werden. Die ursprüngliche Richtung der Primärelektronen würde dann darüber entscheiden, in welche Richtung sich die Anregungskaskade ausbreiten wird.

Eine weitere Möglichkeit, eine größere Ausbeute an Elektronen zu bekommen, besteht in der Reduzierung der Oberflächenbarriere. In Computersimulationen zur kinetischen Elektronenemission von Ohya [140] und Ishitani [141] wurde herausgefunden, dass die simulierte Ausbeute sekundärer Elektronen ins Vakuum in Übereinstimmung mit gemessenen experimentellen Daten gebracht werden kann, wenn die Oberflächenbarriere $E_{SB} = E_F + W$ mit E_F als Fermi-Energie und W als Austrittsarbeit mit einem Faktor k (mit $0 \leq k \leq 1$) versehen wird, welcher die Fermi-Energie reduziert:

$$E_F + W \rightarrow k \cdot E_F + W$$

Dieser Faktor k ist probenabhängig und nimmt Werte von $k = 0.2$ (für Aluminium) und 0.5 (für Silizium und Silber) an. Diese Werte stellen hier allerdings reine Fitparameter dar und lassen sich mit keiner theoretischen Vorschrift begründen. Ein interessanter Punkt hierbei besteht darin, dass zwar einerseits die Oberflächenbarriere $E_{SB} = k \cdot E_F + W$ um den Faktor k reduziert wird, die Energie der Elektronen mit $E_e = E_F + E_{exc}$ allerdings scheinbar unverändert bleibt, sodass die von den Elektronen wahrgenommene Barriere effektiv kleiner wird.

$$I = E_F^{Ag} + \Phi_e^{Ag} \rightarrow I' = 0.5 \cdot (E_F^{Ag} + \Phi_e^{Ag}) \quad (8.17)$$

In einer Monte-Carlo Simulation von Ullah et al.[18] wurde dieses Postulat ebenfalls auf die kinetische innere Elektronenemission angewandt, indem die von heißen Elektronen der Energie $E = E_F + E_{exc}$ in einem Ag|AlO_x|Al-MIM-System wahrgenommene Barriere $I = \Phi_e^{Ag} + E_F^{Ag}$ am Ag|AlO_x-Interface komplett um einen Faktor 0.5 reduziert wurde.

In ihren (auf SRIM basierenden) Simulationen wurden Projektile, Recoils und Elektronen als klassische Teilchen angenommen, wobei die in Stoßprozessen übertragene Energie und die Änderung der Flugrichtung durch Energie- und Impulserhaltung berechnet wurde. Die beste Übereinstimmung (siehe Abbildung 8.24) mit experimentellen Daten von Stefan Meyer [112] zur Energieabhängigkeit der inneren Emission wurde hier erzielt, wenn der Wert für Φ_e^{Ag} auf 1.2 eV festgelegt wurde. Dieser (mittlerweile überholte (Tabelle 3.1)) Zahlenwert für Φ_e^{Ag} wurde ebenfalls von Meyer im Rahmen eines Richardson-Dushman Ansatzes für die

innere Elektronenemission vorausgesagt, allerdings bezieht sich dort die Barrierenhöhe auf die Größe I , während Ullah hingegen die Größe $I < I$ betrachtet. Dieser Unterschied ist insofern strittig, als dass I mit den angenommen Werten von $E_F^{Ag} = 5.5$ eV und $\Phi_e^{Ag} = 1.2$ eV einen Wert von $I = 3.35$ eV annimmt, welcher unterhalb des Fermi-Niveaus von Silber $E_F^{Ag} = 5.5$ eV liegt. Die Barriere würde somit für Elektronen mit der Fermi-Energie E_F^{Ag} zu einer Potentialstufe I reduziert, sodass auch nicht angeregte Elektronen abhängig von ihrem Auftreffwinkel ϑ von der Silberschicht in die Aluminiumschicht pro-

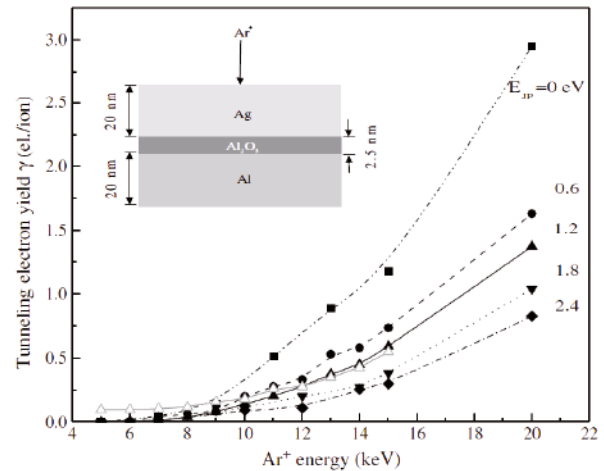


Abbildung 8.24: Ergebnisse einer Monte-Carlo-Simulation von Ullah et al. für ein Ag|AlO_x|Al-MIM-System. Die experimentellen Daten von Meyer [112] werden durch weiße Dreiecke visualisiert, während die ausgefüllten Symbole Rechnung für verschiedene Barrierenhöhen Φ_e^{Ag} widerspiegeln. Abbildung entnommen aus [18].

pagieren können. Diese gravierende und strittige Änderung im Energieschema rechtfertigt auch die Schlussfolgerung von Ullah [18], dass die innere Elektronenemission hauptsächlich durch Kaskadenelektronen (aus inelastischer Elektron-Elektron-Streuung) und weniger durch Projektile direkt angeregte heiße Elektronen getragen wird.

8.4.3.4.3 Streuung von Elektronen

Eine weitere Fehlerquelle besteht darin, dass in den bisherigen Modellannahmen Abklinglänge $\lambda = 10$ nm als konstant für den gesamten betrachteten Energiebereich angenommen wurde. Diese Größe ist jedoch im Allgemeinen sodass sich für verschiedene Elektronenenergien E_e unterschiedliche mittlere freie Weglängen ergeben, was ebenfalls Einfluss auf die Form der berechneten Ausbeute haben wird. Darüber hinaus wurde die Erzeugung von Kaskadenelektronen aus inelastischen Elektron-Elektron Streuprozessen komplett vernachlässigt, da heiße Kaskadenelektronen in dem von uns betrachteten Energieschema (Abbildung 3.2 und Abbildung 3.4) zu wenig Energie besitzen, um die Oxidbarriere zu überwinden.

Der Einfluss der elastischen Streuung auf den zurückgelegten Weg der heißen Elektronen wurde ebenfalls komplett vernachlässigt. Wie Referenz [12] zu entnehmen ist, treten elastische Streuprozesse viel wahrscheinlicher auf als inelastische Prozesse, sodass die Elektronen auf ihrem Weg zur Barriere häufig die Richtung wechseln werden. Dies hat zum einen Einfluss auf die Länge des insgesamt zurückgelegten Weges zwischen Anregungsort und Oxidbarriere. Zum anderen ist die elastische Streuung auch von zentraler Bedeutung für den Transmissionskoeffizienten, da so ein Elektron, welches z. B. mit einer Anregungsenergie von $E_{exc} = 4$ eV unter einem Winkel von $\vartheta = 50^\circ$ erzeugt wird, die Barriere überwinden kann, wenn durch elastische Streuung der relative Auftreffwinkel $\vartheta = 50^\circ$ von zu $\vartheta = 0^\circ$ geändert wird.

8.4.3.4.4 Tiefenabhängige Anregung von Elektronen

In den bisherigen Betrachtungen wurde angenommen, dass alle hochenergetischen Elektronen an der Oberfläche angeregt werden. Diese Annahme beruhte auf dem Gedanken, dass das Projektil infolge der Stoßkaskaden kinetische Energie verliert und so nicht mehr über genügend Energie verfügt, um durch einen Friction-Prozess ein Elektron mit genügend Anregungsenergie zu erzeugen, um die Barriere überwinden zu können.

Hochangeregte Elektronen, welche aus Promotion-Prozessen oder dem Zerfall eines Plasmons hervorgehen, können hingegen auch im Festkörper angeregt werden, sodass der Abstand zur Oxidschicht verringert wird.

8.5 Forward Electron Emission

Da in den bisherigen Ansätzen die Elektron-Elektron-Wechselwirkung komplett vernachlässigt wurde, soll an dieser Stelle abschließend das Modell der sog. Forward Electron Emission [3, 142] vorgestellt werden. Auf den ersten Blick besteht in unserem Fall eine Parallele zu der sog. Forward Electron Emission, da im Gegensatz zum Backward Electron Emission, welche bei uns die externe Emission darstellt (Backward, da die Emissionsrichtung der Elektronen der Richtung der Projektilen entgegengesetzt ist), bei der Forward Electron Emission die Elektronen betrachtet werden, welche den Festkörper in Richtung der Projektilflugrichtung nach vorne verlassen. Auf dem Gebiet der Forward Electron Emission gibt es verschiedene Energiebereiche, welche nachfolgend vorgestellt werden sollen.

8.5.1 Projektilen im MeV-Bereich

In diesem Energiebereich werden Projektilen mit kinetischen Energien im MeV-Bereich [3, 143] untersucht. Der wesentliche Unterschied zwischen unseren Experimenten und der Literatur besteht hier in der Energie des Projektils. Während bei der von Rothard und Potiradis studierten Forward Electron Emission das Projektil eine sehr große Energie besitzt und so auf der anderen Seite des Targets wieder austritt, bleiben bei der inneren Emission die Projektilen im Festkörper stecken und treten nicht wieder hinten aus. Daher wird bei der Forward Electron Emission angenommen, dass die Electronic Stopping Power über die gesamte Driftstrecke im Festkörper konstant ist. Diese Annahme gilt bei uns mit Blick auf die SRIM-Spektren (siehe Abbildung 8.10) jedoch nicht, was auch die abweichende Beobachtung bei der Beschusswinkelabhängigkeit der emittierten Elektronen erklärt. Während bei der Forward Electron Emission, genau wie bei der Backward Electron Emission, die Ausbeute mit $1/\cos(\Theta)$ wächst, nimmt sie in unserem Fall der inneren Emission mit ungefähr $\cos(\Theta)$ ab. Zusätzlich zu dem abweichenden Verhalten der Stopping Power gibt es zwei weitere fundamentale Unterschiede zwischen unserem Fall der inneren Emission und der Forward Electron Emission:

- Die Elektronen: Angeregte Elektronen, welche zur Forward Electron Emission beitragen, werden vorzugsweise auf der Rückseite des Festkörpers angeregt, und zwar (im Modell) durch die Projektilen. In unserem Fall der inneren Emission kommen die Projektilen nicht bis dort unten, sodass die dort detektieren Elektronen entweder heiße ballistische Elektronen aus dem Einschlagbereich sind oder Sekundärelektronen, welche durch Primärelektronen auf dem Weg nach unten angeregt wurden.
- Der Emissionsprozess: Bei der Forward Electron Emission müssen die Elektronen nur die Barriere überwinden, bei der internen Emission gibt es im 2-Band-Modell noch einen Löcheranteil, der berücksichtigt werden muss. Dieser ist jedoch in unse-

rem Fall bei einer Biasspannung von $U_{Bias}=0V$ zu vernachlässigen (siehe Abbildung 3.5).

8.5.2 Projektilen im keV-Bereich

Wesentlich interessanter ist der von Ullah [142] untersuchte Energiebereich, da er mit unserem vergleichbar ist. In ihren auf SRIM und MARLOW basierenden Monte-Carlo-Simulationen nehmen Ullah et. al. an, dass C^+ , Al^+ und Cu^+ - Projektilen analog zum SRIM (siehe Anhang A.2) durch eine Aluminiumfolie einer Dicke von $d_{Al} = 20$ nm fliegen und durch Nuclear Stopping Festkörperatome durch Stöße in Bewegung versetzen. Der wesentliche Unterschied zu SRIM besteht nun darin, dass neben der Bewegung der Atome auch die Bewegung und der Transport der angeregten Elektronen im Rahmen eines ballistischen Transportmodells nach Ashley [144] beschrieben werden können.

Auf dem Weg zur Ober- oder Unterseite der Aluminiumfolie regen die Elektronen hier in inelastischen Streuprozessen weitere Elektronen an, sodass sich analog zu dem Nuclear Stopping Elektronenkaskaden ausbilden. In Abbildung 8.25 sind Ergebnisse des ballistischen Elektronentransports für den Fall $Cu^+ \rightarrow Al$ abgebildet.

- Wie zu erkennen ist, scheint es eine energetische Schwelle für die Elektronenemission in Vorwärtsrichtung zu geben, da bei 5-keV Cu^+ - Beschuss die Mehrzahl der Elektronen den Festkörper am Eintrittsort als Backward-Elektronen verlassen und in den Fällen 15-keV & 35-keV $Cu^+ \rightarrow Al$ die Anzahl der in Vorwärts- und Rückwärtsrichtung emittierten Elektronen ungefähr gleich sind. Dies ist auch aus dem rechten unteren Diagramm in Abbildung 8.25 zu entnehmen ($35 \text{ keV}/63 \text{ amu} \approx 0.5 \text{ keV/amu}$).
- Es fällt weiter auf, dass die emittierten Elektronen eine gewisse laterale Verteilung aufweisen, welche mit zunehmender Energie immer breiter wird. Diese Verteilung ist bei den Forward-Elektronen tendenziell breiter als bei den Backward-Elektronen.
- Ebenfalls energieabhängig ist die Reichweite der emittierten Elektronen. Während bei 5-keV Cu^+ - Projektilen die Elektronen innerhalb von 2-3 nm angeregt werden müssen, um den Festkörper verlassen zu können, wird diese Reichweite bei 15-keV Cu^+ - Projektilen auf ungefähr 6 nm erweitert und beträgt bei 35-keV Cu^+ entlang der Projektiltrajektorie ungefähr 10 nm. Dies hängt damit zusammen, dass die Projektilen im Mittel mehr Energie übertragen und so die Elektronen mehr Energie besitzen.

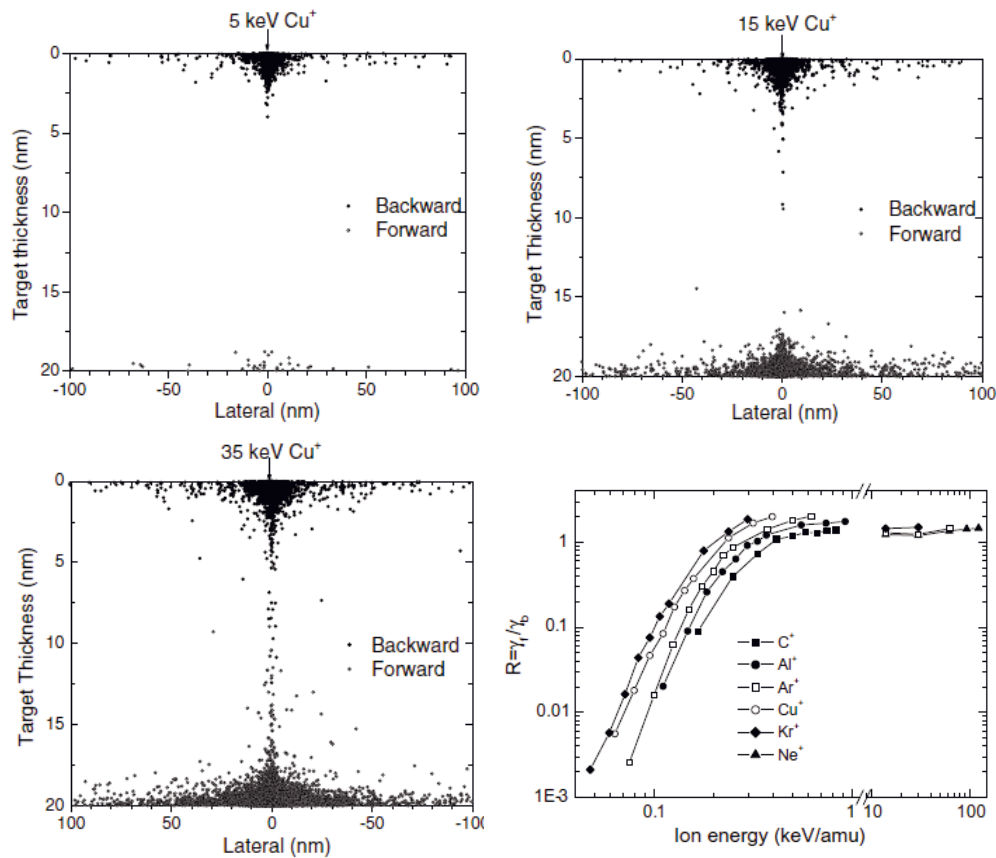


Abbildung 8.25: Monte-Carlo Simulation [142] von Backward und Forward Electron Emission für den Fall $\text{Cu}^+ \rightarrow \text{Al}$. Die schwarzen Punkte stellen den Ursprung von nach hinten emittierten Elektronen dar, während die hohlen Kreise den Ursprungsort der nach vorn emittierten Elektronen kennzeichnen. Dazu (rechts unten) das Verhältnis der gemessenen Ausbeuten in vorwärts- (γ_f) und rückwärts- (γ_b) Richtung (relativ zum Projektil) für verschiedene Projektilsorten. Die Abbildungen sind aus [142] entnommen. Die Punkte (im rechten unteren Diagramm) für den Bereich 10-100 keV/amu sind experimentelle Daten aus [145].

Die Reichweiten der Cu^+ - Projektile in Al können mit SRIM berechnet werden und dem in dieser Arbeit genutzten Fall $\text{Ar}^+ \rightarrow \text{Ag}$ gegenübergestellt werden (Tabelle 8.3):

Energie	Reichweite Cu \rightarrow Al	Reichweite Ar \rightarrow Ag
5 keV	7.1 nm	3.8 nm
15 keV	14.1 nm	8.3 nm
35 keV	27.7 nm	16.4 nm

Tabelle 8.3: Vergleich der mit SRIM berechneten Reichweiten der Projektile bei Ullah [142] und hier.

Wie zu erkennen ist, haben bei Ullah die Projektile im Mittel für die drei Energiebereiche aufsteigend eine Reichweite von 35.5 %, 70.5 % und 100 % im Verhältnis zur Dicke der Aluminiumfolie. Wenn wir in unserem Fall eine Silberschichtdicke von $d_{\text{Ag}} = 40$ nm annehmen, haben die Argon-Projektile der drei Energien im Mittel eine Reichweite von 12.7 %, 27.7 % und 55 %. Im Fall $\text{Ar} \rightarrow \text{Ag}$ müssen die Elektronen daher im Mittel eine längere Distanz zurücklegen, sodass die innere Elektronenausbeute sehr viel kleiner zu erwarten wäre als die externe.

Wenn nun an dieser Stelle die externe Ausbeute von $\text{Ar}^+ \rightarrow \text{Ag}_{\text{poly}}$ mit der inneren Elektronenausbeute für den Fall $\text{Ar}^+ \rightarrow \text{Ag|AlO}_x\text{|Al}$ ($d_{\text{Ag}} = 40 \text{ nm}$) für senkrechten Fall gegenübergestellt wird (Abbildung 6.2 und Abbildung 8.1), so erhält man den linken Teil von Abbildung 8.26. Es ist klar zu erkennen, dass die Elektronenausbeuten Γ_{IEE} (rot) und Γ_{KEE} (schwarz) trotz des (im Verhältnis zu Ullah) nahezu halbierten Verhältnisses zwischen Projektilreichweite und Metallschicht nahezu gleich groß sind. Hierbei ist weiter zu beachten, dass Γ_{KEE} nahezu schichtdickenunabhängig ist, während Γ_{IEE} mit sinkender Schichtdicke exponentiell [8] zunehmen wird. Dieser scheinbare Gegensatz zu Abbildung 8.25 kann durch diverse Unterschiede erklärt werden:

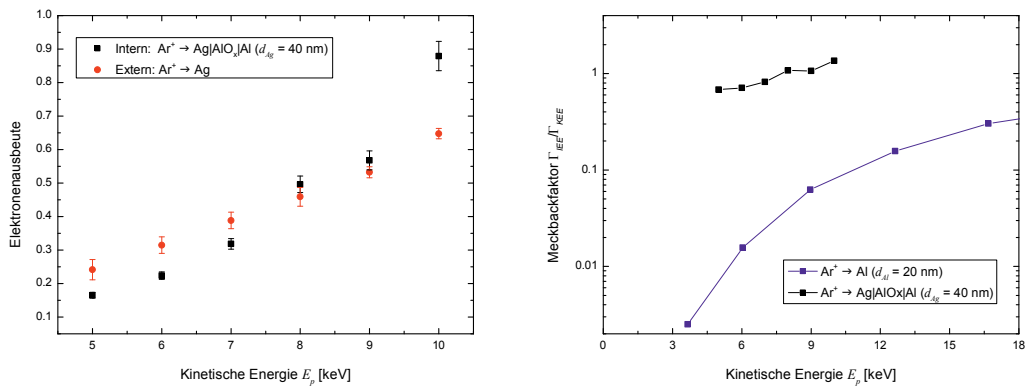


Abbildung 8.26: (Links) Vergleich der inneren und externen Elektronenemission (aus Abbildung 6.2 und Abbildung 8.1). (Rechts) Vergleich des berechneten Meckbachfaktors für den Fall $\text{Ar} \rightarrow \text{Ag|AlO}_x\text{|Al}$ mit Daten von Ullah [142].

- Im Fall der Forward Electron Emission müssen die Elektronen die Austrittsarbeit überwinden, im Fall der inneren Emission hingegen die Tunnelbarriere, welche in der Regel kleiner ist und somit Elektronen mit weniger Energie dazu in der Lage sind sie zu überwinden.
- Im Fall von Ullah sind die Projektile schwerer und somit bei gleicher Energie langsamer. Dies macht sich in der Stopping Power bemerkbar, welche laut Gleichung (2.2) proportional zur Projektilgeschwindigkeit ist.

Auf der rechten Seite von Abbildung 8.26 werden die sog. *Meckbachfaktoren* R für den im Rahmen dieser Arbeit untersuchten Fall $\text{Ar}^+ \rightarrow \text{Ag|AlO}_x\text{|Al}$ (Schwarz) sowie einem Beispiel aus der Literatur $\text{Ar}^+ \rightarrow \text{Al}$ (Blau)[142] dargestellt. Der Meckbachfaktor ist eine charakteristische Größe zur Beschreibung von Forward und Backward Elektron Emission und ist definiert als das Verhältnis der Forward- zu Backward-Elektronenausbeute. Wie zu erkennen ist, ist die Steigung beider Kurven positiv, sodass in beiden Fällen die interne bzw. Forward-Elektronenausbeute mit steigender Projektilenergie an Gewicht gewinnt. Eine bemerkenswerte Beobachtung ist weiter, dass der Meckbachfaktor im Fall der inneren

Elektronenemission im Energiebereich von $E_p = 2\text{-}20\text{ keV}$ um 1-2 Größenordnungen größer ist als die der Forward Electron Emission.

Dies ist ein auf den ersten Blick überraschendes Ergebnis, da einerseits die Schichtdicke in unserem Fall doppelt so groß ist und dazu noch (laut SRIM) die Argon-Projektile in Aluminium eine doppelt so große Reichweite wie in Silber aufweisen (siehe Tabelle 8.3). Zudem sind die Werte für Nuclear und Electronic Stopping Power für beide Modellsysteme ungefähr gleich. Es sollte also erwartet werden, dass der Meckbachfaktor für $\text{Ar}^+ \rightarrow \text{Al}$ größer als der Faktor für $\text{Ar}^+ \rightarrow \text{Ag}$ sein sollte. Dass dieses nicht so ist, liegt an zwei Ursachen:

- Zum einen verwenden Ullah et al. [142] in ihren Monte-Carlo Simulationen wiederum das bereits in Kapitel 8.4.3.4.2 eingeführte Postulat von Ohya [140], dass die Oberflächenbarriere $E_{SB} = E_F^{\text{Al}} + W^{\text{Al}}$ durch $E_{SB} = k \cdot E_F^{\text{Al}} + W^{\text{Al}}$ (mit $k = 0.2$) ersetzt werden kann. Diese Annahme führt zu dem strittigen Phänomen, dass die effektive Oberflächenbarriere mit $E_{SB} \approx 6.22\text{ eV}$ [140] einen kleineren Wert als die Fermi-Energie $E_F^{\text{Al}} = 11.6\text{ eV}$ aufzuweisen scheint, sodass Elektronen in besetzten Zuständen mit einer Energie zwischen 6.22 eV und 11.6 eV auch ohne äußere Anregung nahezu ungehindert den Festkörper ins Vakuum verlassen können. Dies würde auch erklären, warum die das Verhältnis $\Gamma_{IEE}/\Gamma_{KEE}$ bei Ullah so stark zugunsten von Γ_{KEE} ausfällt, da an der Oberfläche angeregte (Kaskaden-) Elektronen so nahezu ungefiltert den Festkörper verlassen können.
- Zum anderen sind die von uns gemessenen Werte für die innere (wie bereits in Kapitel 8.1.1 diskutiert) und externe Elektronenausbeute (siehe auch Kapitel 5) stark von den Barrierenhöhen am Oxid- (Φ_e^{Ag}) bzw. Vakuuminterface (W^{Ag}) abhängen. Diese wiederum sind von der Präparation der Probe abhängig, sodass sich der Meckbachfaktor ebenfalls um bis zu einer Größenordnung ändern kann.

8.6 Fazit

In diesem Kapitel der Arbeit konnte gezeigt werden, dass die experimentell beobachtete innere Elektronenemission in $\text{Ag}/\text{AlO}_x/\text{Al}$ -MIM-Dünnschichtsystemen eine klare und reproduzierbare Beschusswinkelabhängigkeit aufweist, welche sich entgegengesetzt zur Beschusswinkelabhängigkeit der externen Elektronenemission verhält. Das beschusswinkelabhängige qualitative Verhalten der inneren Ausbeute ist darüber hinaus im Rahmen der Messparameter unabhängig von der eingestellten Projektil-Primärenergie (Kapitel 8.2.1), Silberschichtendicke (Kapitel 8.2.2) und Biasspannung zwischen beiden Metallschichten

(Kapitel 8.2.3), sodass der Schluss nahe liegt, dass es sich um einen rein geometrischen Effekt handelt.

Eine weitere zentrale Beobachtung besteht darin, dass der experimentell beobachtete Umpolungspunkt der inneren Elektronenausbeute für verschiedene Beschusswinkel nahezu unverändert bleibt. Zusammen mit den Erkenntnissen aus dem Zwei-Temperatur Modell (Kapitel 3.3) kann zudem anhand der zum Umpolungspunkt gehörenden Biasspannung die Elektronentemperatur am Interface ermittelt werden. Diese scheint mit zunehmendem Winkel im Rahmen der Messgenauigkeit unverändert zu sein, sodass die Beschusswinkelabhängigkeit nicht durch eine Änderung der Elektronentemperatur am Interface begründet werden kann. Ein ähnliches Verhalten ist auch aus der externen Elektronenemission bekannt, in welcher der Absolutwert der Elektronentemperatur an der Oberfläche ebenfalls für zunehmenden Beschusswinkel unverändert bleibt und lediglich die Dauer der Anregung zunimmt.

Aus diesen beiden Beobachtungen (sowie aus Rechnungen zur Beschusswinkelabhängigkeit zur inneren Emission im Rahmen eines diffusiven Transportmodells von S. Hanke) kann geschlossen werden, dass die innere Elektronenausbeute durch heiße Elektronen dominiert wird, welche an der Oberfläche angeregt und dann ballistisch durch den Festkörper transportiert werden.

Basierend auf einem ballistischen Emissionsmodell, welches von Baragiola aus der externen Emission adaptiert wurde, konnte zudem mithilfe von SRIM-Ergebnissen gezeigt werden, dass nicht die Eindringtiefe der Projektile, sondern die anisotrope Anregung der Elektronen der wesentliche Faktor der beschusswinkelabhängigen inneren Emission zu sein scheint. Die zentrale Annahme, welche zur charakteristischen Form der Beschusswinkelabhängigkeit der inneren Ausbeute führt, ist hier, dass diese je nach Anregungsrichtung verschieden weite Strecken bis zum Interface zurücklegen müssen. Die Streuung wird hier nur indirekt behandelt, indem angenommen wird, dass die Anzahl der heißen Elektronen durch Streuprozesse mit einer charakteristischen Abklinglänge exponentiell zurückgeht.

Im Rahmen eines numerischen Modells von Biersack wurde zudem gezeigt, dass die durch direkte Stöße angeregten Elektronen direkt an der Oberfläche angeregt werden müssen und der Einfluss der Recoils auf die innere Emission vernachlässigbar ist. Die Untersuchung des Einflusses anisotroper Anregung wurde weiter verfeinert, indem das Emissionsmodell mit von J. I. Juaristi gerechneten Winkelverteilungen der angeregten Elektronen erweitert wurde. Diese wurden für verschiedene Parametersätze variiert und gezeigt, dass es eine direkte Korrelation zwischen der Winkelverteilung der angeregten Elektronen und der experimentell beobachteten normierten beschusswinkelabhängigen Elektronenausbeute gibt. Während die genaue Parametrisierung der angenommenen Winkelverteilungen eher eine untergeordnete Rolle zu spielen scheinen, scheint die maßgebliche Größe die Flankensteil-

heit des Transportkegels mit dem Öffnungswinkel mit α_{max} zu sein. Für die gezeigten Verteilungen (siehe Abbildung 8.22) mit $\alpha_{max} \approx \pm 45^\circ$ ist es möglich, die experimentell gemessenen normierten inneren Elektronenausbeuten größtenteils zu reproduzieren.

Als Abschluss der dieser Arbeit werden Monte-Carlo Simulationen von Ullah vorgestellt, in welchen der Schwerpunkt auf die Streuung der Ladungsträger gelegt wird. In seinen Veröffentlichungen zur inneren Emission bzw. zur Forward Electron Emission ist es ihm zwar möglich, (für senkrechten Einfall) experimentelle Ergebnisse zur Energieabhängigkeit der Elektronenemission zu bestätigen, benötigt hierfür aber auch die strittige Annahme, dass sich Oberflächen- bzw. Barrierenpotential beliebig tief absenken lassen.

Zusammenfassend kann festgehalten werden, dass es mit dem im Rahmen dieser Arbeit um anisotropische Effekte erweiterten ballistischen Transportmechanismus möglich ist, die normierte Beschusswinkelabhängigkeit der inneren Elektronenemission (bis auf das Plateau für kleine Winkel) zu reproduzieren. Diese Beschreibung beinhaltet zurzeit aber noch einige offene Punkte, welche es in der Zukunft zu klären gilt.

9 Zusammenfassung & Ausblick

Das Ziel dieser Arbeit bestand darin, die Beschusswinkelabhängigkeit der inneren Elektronenemission in Dünnschichtsystemen ($\text{Ag|AlO}_x\text{|Al-MIM}$ -Systemen) zu studieren und so mehr über die physikalischen Prozesse innerhalb des Festkörpers zu lernen. Basierend auf den einzelnen Zusammenfassungen in Kapitel 3.7, 6.5 und 8.6 soll an dieser Stelle ein abschließendes Resümee gezogen werden.

In dieser Arbeit konnte gezeigt werden, dass die innere Elektronenausbeute eine deutliche Beschusswinkelabhängigkeit aufweist, durch welche die Ausbeute beim Übergang von senkrechtem zu streifendem Einfall um eine Größenordnung abnimmt. Die beobachtete Beschusswinkelabhängigkeit ist zudem innerhalb des untersuchten Messbereichs von einstellbaren Größen wie Projektilenergie (5-15 keV) und Silberschichtdicke (20-40 nm) unabhängig. In allen Fällen wird zunächst ein Plateau im Bereich von $0-30^\circ$, dann ein rapider Abfall zwischen $30-60^\circ$ um einen Faktor fünf und zuletzt einen zusätzlichen Rückgang um einen Faktor zwei für den Bereich $60-85^\circ$ beobachtet. Zudem konnte gezeigt werden, dass die innere Elektronenausbeute für eine Beschussenergie von 10 keV unabhängig vom Beschusswinkel im Mittel immer bei einer Biasspannung von rund 1 V umzupolen scheint.

Durch ein von Stefan Meyer entwickeltes Zwei-Temperatur Modell kann ein direkter Zusammenhang zwischen gemessenem Umpolungspunkt und Elektronentemperatur am Interface hergestellt werden. Für den Beschuss mit 10-keV Argon-Ionen kann somit eine lokale Erhöhung der Elektronentemperatur auf 12000 K am Ag|AlO_x -Interface abgeschätzt werden, welche sich für verschiedene Beschusswinkel im Rahmen der Messgenauigkeit nicht zu ändern scheint. Hieraus lässt sich ableiten, dass der Rückgang der inneren Elektronenausbeute nicht in einem thermodynamischen Bild beschreibbar ist, sondern durch heiße Elektronen dominiert wird, welche ballistisch durch den Festkörper in Richtung Interface propagieren.

Um die Gültigkeit (aus der externen Emission bekannter) ballistischer Modelle in unserem Messbereich zu verifizieren, wurde die Energie- und Beschusswinkelabhängigkeit der externen Elektronenemission gemessen und mit Literaturdaten verglichen. Die erhaltenen Messergebnisse zur externen Emission sind mit der Literatur im Einklang und können erfolgreich durch bekannte Modellen von Baragiola und Sroubek beschrieben werden. Eine interessante Beobachtung an dieser Stelle besteht darin, dass die Energieabhängigkeit von innerer und externer Elektronenausbeute ein ähnliches Verhalten zeigt, die Beschusswinkelabhängigkeit hingegen komplett entgegengesetzt verläuft.

Im letzten Teil der Arbeit wird gezeigt, dass es mit einem aus der externen Emission adaptierten ballistischen Emissionsmodell möglich ist, die Beschusswinkelabhängigkeit der inneren Emission qualitativ größtenteils zu verstehen. In dem Modell wird angenommen, dass die am Interface detektierten heißen Elektronen anisotrop durch Projektilen in der Nähe der Oberfläche angeregt werden, und danach im Rahmen eines vereinfachten ballistischen Transportmodells in Richtung Ag|AlO_x-Interface fliegen. Die zentrale Annahme besteht darin, dass die innerhalb einer Winkelverteilung angeregten Elektronen je nach Anregungsrichtung (relativ zur Projektilrichtung) unterschiedlich weite Strecken bis zum Interface zurücklegen. Der Rückgang der beschusswinkelabhängigen inneren Ausbeute korreliert hier direkt mit dem streuungsinduzierten Rückgang der Elektronen auf dem Weg durch den Festkörper. Eine weitere Beobachtung ist hier, dass die Form der Beschusswinkelabhängigkeit der inneren Ausbeute direkt mit der Form der Winkelverteilung der angeregten Elektronen zusammenhängt, und die Flankensteilheit des Transportkegels mit dem Öffnungswinkel $\alpha_{max} \approx \pm 45^\circ$ der entscheidende Parameter bei der Beschreibung der (normierten) Beschusswinkelabhängigkeit der inneren Emission zu sein scheint.

Zusammenfassend kann festgehalten werden, dass das präsentierte, vereinfachte Modell nicht ausreicht, um die Beschusswinkelabhängigkeit der normierten inneren Emission komplett zu verstehen. Während der Rückgang der Ausbeute von 30-85° qualitativ reproduziert werden kann, ist es bislang nicht möglich, das anfängliche Plateau zwischen 0-30° zu erklären. Dies eröffnet neue Anknüpfungspunkte für zukünftige Arbeiten:

Zum einen gilt es den Einfluss der gestreuten Elektronen auf die innere Elektronenausbeute zu untersuchen, indem die Winkelverteilungen der angeregten Elektronen in einen Monte-Carlo Code eingeflochten werden. Von besonderem Interesse wäre hier die Variation des Einschusswinkels des Projektils, um abzuschätzen zu können, wie sehr sich die Streuprozesse auf die Beschusswinkelabhängigkeit der inneren Emission auswirken.

Eine weitere Möglichkeit besteht darin, die Winkelverteilungen angeregter Elektronen auch für andere Projektil-Target-Kombinationen und andere Anregungsmechanismen zu berechnen. Die resultierenden Verteilungen könnten dann mit der in unserer Arbeitsgruppe eingesetzten Molekulardynamik verknüpft werden, um so den Einfluss der Projektilstreuung und den Einfluss der Recoils auf die innere Emission genauer zu beleuchten. Insbesondere der Einfluss anderer Anregungsmechanismen ist von großem Interesse, da diese zu anderen Energie- und Winkelverteilungen der heißen Elektronen führen.

Basierend auf den Ergebnissen von A. Bernhart könnten auch die numerischen Simulationen in Kapitel 3 für das neue Modell des Ag|AlO_x|Al-MIM-System wiederholt werden, um zu prüfen, ob die in dieser Arbeit für das Bild der trapezförmigen Barriere getroffenen Aussagen auch im neuen Modell ihre Gültigkeit behalten und inwieweit sich der Emissionsvorgang durch eine neue Form der Barriere ändern wird.

A Anhang

A.1	Die Physik hinter den MIM-Systemen.....	145
A.1.1	Herstellung von Ag AlO _x Al-MIM-Systemen.....	145
A.1.2	Charakterisierung der MIM-Systeme.....	148
A.1.3	Kennlinien.....	150
A.1.4	Einfluss von Schäden an der Oxidschicht.....	151
A.2	Funktionsweise von SRIM/TRIM.....	153
A.2.1	Allgemeines.....	153
A.2.2	Die Physik hinter SRIM.....	154
A.3	Winkelverteilung der Projektile.....	160

A.1 Die Physik hinter den MIM-Systemen

A.1.1 Herstellung von Ag|AlO_x|Al-MIM-Systemen

Die Herstellung der MIM-Systeme fand am Campus Essen in der uniinternen Arbeitsgruppe von Prof. Hasselbrink statt. Die Herstellung eines MIM-Systems umfasst drei Arbeitsschritte, welche in diesem Abschnitt vorgestellt werden sollen.

- (1) Aufdampfen der Aluminiumschicht
- (2) Oxidation der Aluminiumoberfläche
- (3) Aufdampfen der Silberschicht

Das Aufdampfen von Ag und Al fand in einer eigens dafür aufgebauten Aufdampfkammer statt. Diese besteht aus einem Edelstahlzylinder, welche mit Turbopumpe und Druckmessgerät ausgestattet ist und von oben mit einer gummigedichteten Glaskuppel verschlossen werden kann. Im Inneren ist ein austauschbarer thermischer Verdampfer verbaut, welcher wahlweise, je nach Arbeitsschritt, mit Silber (1) oder Aluminium (3) bestückt werden kann. Oberhalb des Verdampfers sitzt der Probenhalter, welcher einen Schwingquarz zur Schichtdickenbestimmung sowie einen montierbaren Aufsatz zur Fixierung von Proben besitzt. Dieser Aufsatz bietet Platz für bis zu drei Probenträger und kann, je nach verdampftem Material, mit zwei wechselbaren Blenden ausgestattet werden. Um den Verdampfer vor der Herstellung der Schichten kalibrieren zu können, gibt es zudem einen beweglichen Shutter, welcher mithilfe einer Drehdurchführung bedient werden und bei Bedarf die Probenträger vom Verdampfer abschirmen kann.

Status	Druck [10^{-8} mbar]
Leerlauf	3
Aufdampfprozess	20-100

Tabelle A.1: Betriebsdrücke in der Essener Aufdampfkammer.

Die Druckverhältnisse in der Kammer sind in Tabelle A.1 abgebildet. Der Probenträger eines MIM-Systems besteht aus einem 0.1 mm-dicken Mikroskopier-Deckgläschen. Dieses wird zunächst mit einem Diamantschneider in die richtige Form gebracht und gründlich in einem Gefäß mit Ethanol im Ultraschallbad gereinigt. Nach dem Reinigen werden die Probenträger mit Stickstoff getrocknet und in dem Probenhalter fixiert.

Um die Aluminiumschicht aufbringen zu können, wird der Verdampfer mit einer Wolframspirale ausgerüstet, in welcher kleine Stücke eines Aluminiumdrahtes mit 1 mm Durchmesser befestigt werden. Unter Vakuumbedingungen werden danach mittels eines Netzteils die Spannung und der Strom durch die Wolframspirale über einen Zeitraum von einer Stunde langsam erhöht, um das Aluminium gleichmäßig zu erhitzen. Bei zu schnellem Heizen des Verdampfers besteht die Gefahr, dass das Aluminium explodiert und die Verdampfungsrate riesig wird, was zu rauen Schichten führen kann. Die Betriebsparameter sind in Tabelle A.2 aufgeführt.

Größe	Wert	Einheit
Strom	30	A
Spannung	2.3	V
Schichtdicke	25	nm
Rate	0.5-1.5	nm/min

Tabelle A.2: Betriebsparameter für den thermischen Verdampfer zur Herstellung einer Aluminiumschicht

Nach erfolgreichem Aufdampfen werden die Probenträger zur Erzeugung der Oxidschicht aus dem Vakuum entfernt. Aus den diversen Verfahren zur Oxidierung einer Metallschicht wird in diesem Fall die Methode der anodischen Oxidation genutzt, welche in unserem Fall durch eine Tropfenzelle realisiert wird. Der schematische Aufbau ist in Abbildung A.1 zu sehen.

Bei der anodischen Oxidation werden Anode und Kathode in ein Elektrolyt getaucht, welches sich durch eine Potentialdifferenz zersetzt und (in diesem Fall) die Anode oxidiert. Bei der Herstellung der Aluminiumoxidschichten fungiert der auf dem Probenträger aufgebraute Aluminiumfilm als Anode. Die Kathode wird durch einen Platindraht realisiert, welcher sich in der Tropfenzelle in einer NaAc-Buffer-Lösung befindet. Zusätzlich ist in dem Aufbau noch eine kommerzielle Silber-Silberchlorid-Elektrode installiert, welche die Potentialdifferenz zwischen Platindraht und Probenträger kontrollieren soll. Zur Oxidation wird der Probenträger mit einer Laborhebebühne von unten auf einen Abstand von 5 mm

an die Tropfenzelle herangefahren. Danach wird durch sanften Druck auf die Ag-AgCl-Elektrode an der Unterseite der Zelle ein Tropfen mit einer Fläche von ungefähr 1 cm^2 erzeugt, welcher den leitenden Kontakt zwischen Elektrolyt und Aluminiumfilm herstellt. In Tabelle A.3 sind die Betriebsparameter am Potentiostaten zusammengefasst.

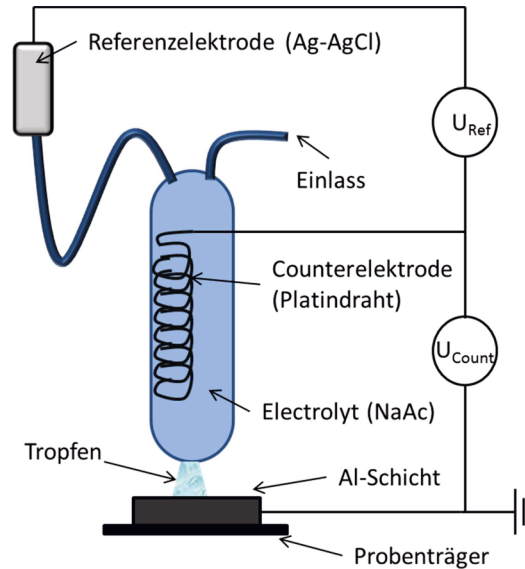


Abbildung A.1: Tropfzellenaufbau zur Erzeugung von Oxidschichten mithilfe anodischer Oxidation eines Aluminiumfilms.

Zu Beginn des Oxidationsvorgangs wird zwischen dem Platindraht und dem Aluminiumfilm die Potentialdifferenz U_{Count} (Start) angelegt, wobei der Platindraht auf das Potential U_{Count} und der Aluminiumfilm auf Erdpotential gelegt wird. U_{Count} (Start) soll sicherstellen, dass (im Gegensatz zu U_{Count} (Start) = 0 V) kein unkontrolliertes Oxidwachstum beginnt. Der Wert für U_{Count} (Start) kommt aus dem Poirbaix-Phasendiagramm für Aluminium und wird durch die gewählte Referenzelektrode (in unserem Fall Ag-AgCl) korrigiert.

Größe	Wert	Einheit
U_{Count} (Start)	-1.3	V
U_{Count} (Ende)	3	V
ΔU_{Count}	0.1	mV/s
U_{Ref}	0	V
Wachstumsrate	1.6	nm/V

Tabelle A.3: Betriebsparameter des Potentiostaten bei der anodischen Oxidation

Während des Oxidationsvorgangs wird die Spannung mit ΔU_{Count} sukzessive bis U_{Count} (Ende) erhöht und dabei der Strom zwischen beiden Elektroden gemessen. Die $U_{Ref} = 0 \text{ V}$ bedeuten, dass zwischen dem Platindraht und der Silberelektrode während der Messung keine Spannung abfällt. Aus vorherigen Messungen ist bekannt, dass die Wachstumsrate der AlO_x -Schicht 1.6 nm/V beträgt, sodass wir auf Grundlage der Werte in Tabelle A.3 eine Oxidschichtdicke von knapp $d_{Ox} = 5 \text{ nm}$ bekommen.

Nach erfolgreicher Oxidation wird der Probenträger aus dem Aufbau entfernt und mit destilliertem Wasser abgespült. Danach wird der Probenträger versetzt eingebaut und das nächste Segment der Aluminiumschicht oxidiert. Der Prozess wiederholt sich solange, bis die gesamte Aluminiumschicht oxidiert ist.

Größe	Wert	Einheit
Strom	12.5	A
Spannung	0.81	V
Schichtdicke	30	nm
Rate	0.1-0.3	nm/min

Tabelle A.4: Betriebsparameter für den thermischen Verdampfer zur Herstellung einer Silberschicht

Im letzten Schritt wird der Probenträger mit dem oxidierten Aluminiumfilm wieder auf dem Probenhalter ins Vakuum gebracht. Der thermische Verdampfer wird für diesen Schritt mit einem Tantalschiffchen ausgerüstet, in welchem sich Stücke eines Silberdrahtes (1 mm Durchmesser) befinden. Nach Evakuierung der Kammer wird dieser dann wieder stückweise auf Betriebstemperatur aufgeheizt und die Silberschicht aufgedampft. Die Betriebsparameter sind in Tabelle A.4 zu finden.

A.1.2 Charakterisierung der MIM-Systeme

Die in Abschnitt A.1.1 präparierten MIM-Systeme sind hochempfindlich, sodass bei der Handhabung größtmögliche Sorgfalt erfolgen muss. Die im Rahmen dieser Arbeit aufgetretenen möglichen Fehlfunktionen in MIM-Systemen lassen sich grundsätzlich auf zwei mögliche Fehlerursachen eingrenzen:

1. Mangelnde Leitfähigkeit der Metallfilme
2. Beschädigung der isolierenden Oxidschicht zwischen beiden Metallschichten

Die Güte der aufgedampften Schichten kann über die Messung der elektrischen Schichtwiderstände bestimmt werden. Hierfür werden der Anfang und das Ende der Metallschicht durch zwei Prüfspitzen eines Multimeters kontaktiert und der Schichtwiderstand vermessen. Typische Werte für unsere Schichten sind in Tabelle A.5 aufgeführt.

Größe	Wert	Einheit
R_{Ag}	2.6 - 3.4	Ω
R_{Al}	9.6 - 12.7	Ω

Tabelle A.5: Typische Widerstände der aufgedampften Metallschichten in einem $Ag|AlO_x|Al$ -MIM-System. Die Schichtdicken der Silberschicht und der Aluminiumschicht betragen hier 20-25nm.

Der Versuch, den elektrischen Widerstand der Oxidbarriere (typischerweise im $k\Omega$ -Bereich) mit einem Voltmeter zu messen, führt im verwendeten $Ag|AlO_x|Al$ -MIM-System zu irreparablen Schäden. Dies liegt darin begründet, dass zur Messung des Widerstands der AlO_x -Schicht das Multimeter bis zu 9 V zwischen beiden Prüfspitzen induziert. Dieser als

Biasspannung fungierenden angelegten Spannung kann das Oxid nicht lange standhalten. Es bildet sich mindestens ein Durchschlagskrater im Oxid, welcher die kapazitiven Eigenschaften des MIM-Systems zunichtemacht. Daher sollten konstante Spannungen mit Werten größer als 1.5-2 V (Erfahrungswert) vermieden werden.

Um die Funktionalität der Oxidschicht zu überprüfen, gibt es die Möglichkeit Kennlinien zu messen. Hierfür wird der fertige MIM mittels zweier Klammern unter Atmosphärendruck kontaktiert und diese mit einem Potentiostaten (Typ HEKA PG 510) verbunden.

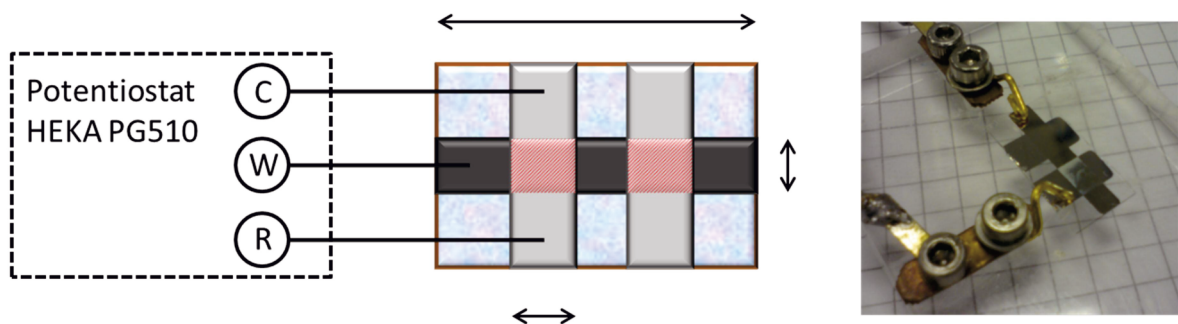


Abbildung A.2: Kontaktierung eines MIM-Systems zur Überprüfung der Funktionsfähigkeit. Die aktive Fläche des MIM-Systems ist in Rot hervorgehoben.

In Abbildung A.2 ist die Kontaktierung eines $\text{Ag}|\text{AlO}_x|\text{Al}$ -MIM-Systems als Schema (links) und in Realität (rechts) veranschaulicht. Um die Güte der Oxidschicht zu messen, können nun verschiedene Prüfverfahren angewandt werden. Zunächst wird im Stand-by-Modus des HEKA PG 510 die Biasspannung auf $U_{\text{Bias}} = 0 \text{ V}$ festgesetzt und der (Leck-)Strom gemessen. Da die vom Potentiostaten an das MIM-System ausgegebene Spannung mit einem leichten Netzbrummen behaftet ist, kommt es als Folge der hochfrequenten Rauschamplitude zu kleinen Umladungsströmen im MIM. Diese lassen Rückschlüsse auf den Status der Oxidschicht zu. Vor dem Wechsel vom *Stand-by*-Modus in den *Cell*-Modus (Betriebsmodus) sollten am Potentiostaten zunächst alle Filter (Corrente Filter & Bandit) auf maximalen Durchlass und die Verstärkung (Corrente Range) auf den geringsten Wert gesetzt werden. Nach dem Wechsel können die Filter schrittweise wieder auf den gewünschten Wert gesetzt und die Current Range mit Blick auf das Display stufenweise zu niedrigen Strömen ausgedehnt werden, bis entweder ein Stromsignal zu sehen ist, oder die Current Range auf der maximalen Verstärkung (10^7 V/A) steht:

- Es wird ein Strom von null angezeigt: In diesem Fall sind die rauschinduzierten Strombeiträge vernachlässigbar und die Oxidschicht voraussichtlich intakt.
- Es wird ein sehr großer Strom von bis zu $1 \mu\text{A}$ angezeigt. Dieser Leckstrom kann zum einen durch eine Beschädigung der AlO_x -Schicht oder von einem auf dem MIM liegenden Wasserfilm stammen. Im zweiten Fall kann versucht werden, die Wasserschicht von dem MIM-System zu entfernen. Dabei hat sich das sog.

Flashen der Probe bewährt Hierbei werden die Ober- und Untergrenze sowie die Scanrate von U_{Bias} (der Spannung zwischen der Silber- und Aluminiumschicht) so eingestellt, dass die Spannung mit 1000 V/s zwischen -200 mV und +2 V oszilliert. Wenn dieser Vorgang ein paar Mal für rund zwei Sekunden pro Zyklus gestartet wird, sollte der Leckstrom deutlich (bis in den einstelligen nA-Bereich) absinken.

- Es wird kein Strom gemessen. Dieser Fall kann auftreten, wenn (wie in Abbildung A.2 zu sehen) auf der Silberschicht eine weiße Verfärbung auftaucht. Hierbei handelt es sich vermutlich um Silberoxid. In diesem Fall wächst der Widerstand der Silberschicht (Tabelle A.5) ins Unendliche, sodass kein Strom mehr fließen kann.

A.1.3 Kennlinien

Wenn die Leckströme im Bereich von 0-10 nA liegen, können sog. Kennlinien aufgenommen werden. Diese liefern Aussagen über die kapazitiven Eigenschaften des untersuchten MIM-Systems und dienen der Kontrolle, ob eine Probe noch intakt ist oder (durch Lagerung bzw. Ionenbeschuss) die Oxidschicht Schaden genommen hat. Hierzu wird zwischen der Aluminium- und der Silberschicht eine Dreiecksspannung mit einer festen Rampengeschwindigkeit dU/dt angelegt, welche sich gemäß dem für Plattenkondensatoren gültigen Gesetz $Q = C \cdot U$ (Q = Ladung, U = Biasspannung und C = Kapazität des MIM-Systems) nach Ableitung nach der Zeit mit Gleichung (A.1) auswerten lässt:

$$\frac{dQ}{dt} = I_{Tunnel} = C \cdot \left(\frac{dU_{Bias}}{dt} \right) \quad (A.1)$$

Für eine konstante Kapazität C und einer konstanten Rampengeschwindigkeit dU_{Bias}/dt sollte sich demnach ein konstanter Umladungsstrom I_{Tunnel} ergeben. In Abbildung A.3 sind Kennlinien verschiedener Ag|AlO_x|Al-MIM-Systeme abgebildet. Im linken Teil sind die Kennlinien eines intakten MIM-Systems vor und nach dem Beschuss durch 10-keV Argon-Projektile zu sehen.

Hier wird ein kapazitives Verhalten der Kennlinie beobachtet, da sich das MIM-System wie ein Plattenkondensator mit den beiden Metallschichten als Platten und dem Oxid als Dielektrikum verhält. Dieses Verhalten stellt das Idealverhalten dar und es ist möglich, Messungen mit konstanter und variabler Biasspannung durchzuführen. Aus der Kennlinie ergibt sich nach Einsetzen der Größe $I_{Tunnel} = 6$ nA sowie $dU_{Bias}/dt = 20$ mV/s eine Kapazität von $C = 300$ nF, welches einen typischen Wert für ein Ag|AlO_x|Al mit einer Oxidschichtdicke von 3 nm und einer aktiven Fläche von 25 mm² darstellt.

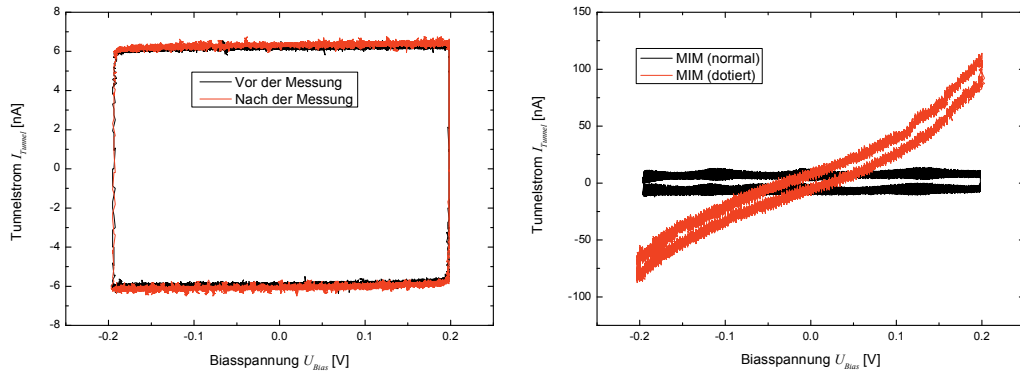


Abbildung A.3: Kennlinien eines Ag|AlO_x|Al-MIM-Systems. Links ist die Aufnahme der Kennlinie vor und nach einer Messung zu sehen, rechts der Einfluss von Ionendotierungen im Oxid auf die Kennlinie.

Im rechten Teil von Abbildung A.3 ist hingegen ein Fall abgebildet, bei welchem sich die Kennlinie durch den Beschuss geändert hat. In diesem Fall ist die Oxidschicht mit Fremdatomen dotiert, wodurch es zu einer diodenartigen Kennlinie kommt. Dieser Effekt ist meist aber nur temporär und kann durch fortwährendes Aufnehmen der Kennlinien behoben werden. Nach einer Zeit von bis zu einigen Stunden gelingt es in den meisten Fällen, die Kennlinie (rot) wieder in den Ursprungszustand (schwarz) zurückzusetzen.

Zum besseren Verständnis kann der MIM auch mit einem Ersatzschaltbild erklärt werden (siehe Abbildung A.4). Hier wird die Oxidschicht als Parallelschaltung eines Kondensators ($C_{\text{Oxid}} \approx 300 \text{ nF}$) mit einem elektrischen Widerstand ($R_{\text{Oxid}} \approx 1 \text{ k}\Omega$) beschrieben, welche die Kapazität der MIM-Systeme und den elektrischen Widerstand der Oxidschicht beschreiben. Vor und hinter dem Oxid sind die Widerstände der Silber- und Aluminiumschicht ($R_{\text{Ag}} \approx 3 \Omega$ und $R_{\text{Al}} \approx 10 \Omega$) in Reihe geschaltet.

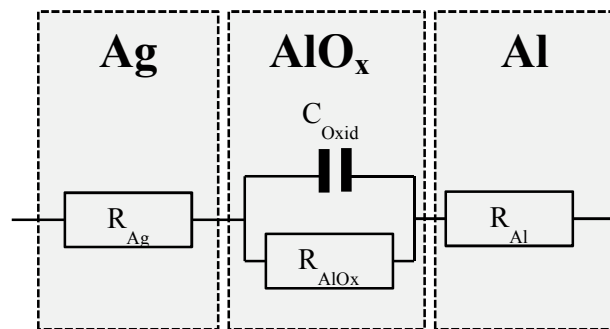


Abbildung A.4: Ersatzschaltbild eines Ag|AlO_x|Al-MIM-Systems.

A.1.4 Einfluss von Schäden an der Oxidschicht

Grundsätzlich wird die Funktionalität eines MIM-Systems in den meisten Fällen durch den Zustand der Oxidschicht bestimmt. Weicht die gemessene Kennlinie von der Idealform eines Plattenkondensators ab, kann es hierfür verschiedene Ursachen geben:

- Löcher im Oxid: Kommt es während der Präparation oder während des Beschusses der Probe zu Löchern in der Oxidschicht, so nimmt die Kennlinie ohmsches Verhalten an und der MIM ist irreparabel beschädigt. Ursachen sind zum einen Spannungsdurchschläge, welche bei einer dauerhaften zu großen Potentialdifferenz von $U_{Bias} > 2 \text{ V}$ auftreten können. Weiterhin besteht das Risiko, dass sich im Herstellungsprozess durch die anodische Oxidation bei Atmosphärendruck Fremdatome unter oder über dem Oxid anlagern und dieses beschädigen. Eine weitere mögliche Ursache liegt in der Sorgfalt, mit welcher die Aluminium und die Silberschicht hergestellt wurden. Bei rissigen oder zu rauen Filmen besteht hier ebenfalls die Gefahr einer instabilen Oxidschicht.
- Feste Fremdatome im Oxid: In diesem Fall gibt es ins Oxid integrierte Ionenrümpfe, welche von Elektronen dazu benutzt werden können, um (wie auf Trittsteinen durch einen Fluss) durch das Oxid zu hüpfen. In diesem Fall verhält sich die gemessene Kennlinie wie eine Diode und lässt sich auch durch fortlaufende Kennlinien nicht mehr verbessern.
- Mobile Fremdatome im Oxid: Hier gibt es (wie bereits zu Abbildung A.3 diskutiert) mobile Ionenrümpfe im Oxid, welche von den Elektronen zur Durchquerung des Oxids genutzt werden können. Da diese aber mobil sind, können sie durch fortlaufende Aufnahme der Kennlinie selbst in Bewegung versetzt und aus dem Oxid herausbewegt werden. Gelingt dies, kann an der Kennlinie der Übergang von diodenhaften zu kapazitiven Verhalten beobachtet werden.

Die hier diskutierten Fremdatome können verschiedene Ursache haben: Es können einerseits ionisierte Silberatome sein, welche beim thermischen Verdampfen auf das Oxid treffen und sich dort in die Gitterstruktur integrieren. Um dies zu vermeiden, kann ein Ablenkplattenpaar vor die zu bedampfende AlO_x/Al -Probe montiert werden, welches Ionen aus dem Fluss verdampfter Silberteilchen absaugt. Weiterhin besteht das Risiko, dass sich im Zuge der anodischen Oxidation an Atmosphäre oder bei schlechtem Druck in der Vakuumkammer Restgasatome auf das Oxid setzen und in dieses hineindiffundieren. Ein letzter möglicher Grund für Fremdatome im Oxid stellt der Beschuss der Silberschicht mit Argon-Ionen dar. Wenn die Silberoberfläche durch Beschuss aufgeraut ist, besteht die Möglichkeit, dass ein Argon-Ion bis zum Oxid vordringt oder ein Silberatom als Folge einer Stoßkaskade sich Richtung Oxid bewegt.

Teilweise kommt es allerdings auch zu Fällen, in denen sich der MIM selbstständig (z. B. über Nacht) regeneriert. Hier wird vermutet, dass es sich um beschussinduzierte Aufladungseffekte handelt, welche sich nach einiger Zeit abbauen. Darüber hinaus ist bekannt, dass im Festkörper zur Ruhe gekommene Argon-Projektile diesen mangels Bindungspartner wieder durch Diffusion selbstständig verlassen können, wodurch eventuell auch im Oxid implantierte Argon-Ionen betroffen sind. Weiterhin ist in Arbeiten von Stella et al.

[146] gezeigt worden, dass das Oxid selbstständig weiter nach unten in die Aluminiumschicht wachsen kann, wodurch eventuelle Beschädigungen oder implantierte Fremdatome durch den angewachsenen Abstand zwischen der Silber- und der Aluminiumschicht an Bedeutung verlieren können und sich das Oxid selbstständig heilen kann.

A.2 Funktionsweise von SRIM/TRIM

A.2.1 Allgemeines

Da im Rahmen dieser Arbeit die numerische Auswertung von Nuclear und Electronic Stopping mithilfe der SRIM/TRIM Software durchgeführt wurde, soll diese im folgenden Kapitel kurz vorgestellt werden. Das Kapitel basiert auf dem offiziellen Buch zu SRM/TRIM [25].

Die Abkürzungen SRIM/TRIM stehen für Stopping Range of Ions in Matter bzw. Transport of Ions in Matter. Der Fokus von SRIM liegt auf der Bestimmung von Ionenreichweiten im Festkörper für verschiedene Beschussenergien, wobei gemittelte Werte für Nuclear und electronic Stopping ausgegeben werden. Zusätzlich wird die Streuung des Ions, das sog. Straggling, bestimmt. TRIM erweitert SRIM und simuliert komplette Trajektorien von Projektilen sowie in Bewegung versetzten Festkörperatomen. Hierbei liegt der Fokus auf Reichweitenverteilungen, Defekterzeugung im Festkörper und Transmissions- bzw. Reflexionswahrscheinlichkeiten. Der elektronische Energieverlust geht in SRIM/TRIM lediglich als Energieverlustprozess ein, d. h. Elektronen und die Bewegung dieser werden nicht simuliert. Stattdessen erhält der Benutzer Auskunft, in welcher Schicht das Teilchen wie viel Energie an das Elektronensystem verloren hat.

Im Gegensatz zu gängigen Molekulardynamik-Simulationen gibt es in SRIM keine einstellbare Kristallstruktur mit festen Atompositionen. Stattdessen errechnet SRIM aus der Dichte des Festkörpers eine Wahrscheinlichkeit dafür, dass ein Teilchen innerhalb einer gewissen Wegstrecke auf ein anderes Teilchen trifft und an diesem gestreut wird. Der Vorteil dieser Vorgehensweise ist, dass keine Informationen über die Kristallstruktur vorliegen müssen, sondern die Kenntnis der Dichte und Dicke eines Materials ausreicht, um dieses in SRIM einzubinden und zu simulieren. Die Festkörper sind somit immer von amorpher Struktur. Projektilen können gleichermaßen wie Festkörpermateriale aus einer Datenbank des Periodensystems ausgewählt werden. Bei den Projektilen werden kinetische Energie, Auftreffwinkel und Anzahl festgelegt, während beim Festkörper die Anzahl und Dicke der unterschiedlichen Schichten sowie deren Stöchiometrie eingestellt werden kann. Die Trajektorien werden solange verfolgt, bis die Energie der Teilchen eine vorgegebene Ener-

gieschwelle unterschreitet, die in der Regel der Defektenergie (einem weiteren Parameter, welcher ebenfalls aus einer Datenbank entnommen wird) entspricht.

Eine typische TRIM-Rechnung für 10 keV Ar → Ag wird in Abbildung A.5 gezeigt. In TRIM können zum einen die Trajektorien der Projektile (rot) allein oder auch zum anderen zusammen mit den in Bewegung versetzten Festkörperatomen (grün) visualisiert werden.

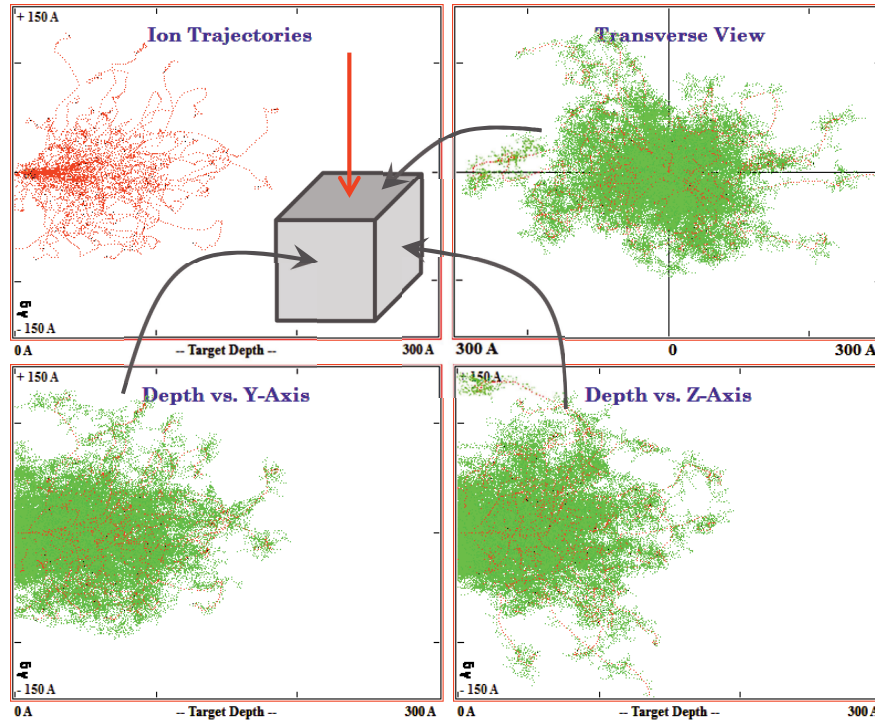


Abbildung A.5: TRIM-Simulationen eines Argon-Ionen Einschlags in Silber. Projektile sind rot, in Bewegung versetzte Festkörperatome grün dargestellt.

A.2.2 Die Physik hinter SRIM

Zentrale Größe in den Rechnungen ist die Bestimmung des Streuwinkels, da er einerseits die weitere Driftrichtung des Teilchens im Festkörper als auch die beim Stoß übertragene Energie $T(\Theta)$ festlegt. Zur Bestimmung dieses Winkels muss in der Regel bei jedem Stoß das Stoßintegral (Gleichung (A.2)) gelöst werden.

$$\Theta = \pi - 2 \int_{r_{\min}}^{\infty} \frac{P}{r^2 \left[1 - \frac{V(r)}{E_C} - \frac{P^2}{r^2} \right]^{1/2}} dr \quad (\text{A.2})$$

$E_C = E_p / (1 + M_1/M_2)$ ist hier die kinetische Energie im Schwerpunktsystem, M_1 und M_2 die Massen der Stoßpartner, E_p die kinetische Energie des Projektils, r der Abstand der beiden Stoßpartner, P der Stoßparameter und $V(r)$ das verwendete interatomare

Wechselwirkungspotential. Im Schwerpunktsystem ist die Wechselwirkung zwischen den Stoßpartnern mit den Kernladungen Z_1 und Z_2 durch ein abgeschirmtes Coulombpotential im cgs-System beschreibbar durch:

$$V(r) = \frac{Z_1 Z_2 e^2}{r} \cdot \chi\left(\frac{r}{a}\right) \quad (\text{A.3})$$

Dieses setzt sich aus dem Coulombpotential und einer Abschirmfunktion χ zusammen, welche vom Abstand r und der Abschirmlänge a abhängen. In der Literatur gibt es je nach gewählter Projektil-Target-Kombination diverse Definitionen von Abschirmfunktion und Abschirmlänge a , die auf Modellen von Bohr, Firsov und Lindhard basieren. SRIM führt eine universelle Abschirmfunktion χ_U (Gleichung (A.4)) mit einer universellen Abschirmlänge a_U (Gleichung (A.5)) ein, welche ein Kompromiss aus allen Modellen ist und von den Fitparametern so gewählt ist, dass die experimentellen Ergebnisse im Rahmen einer Genauigkeit von 5 % beschrieben werden.

$$\begin{aligned} \chi_U\left(\frac{r}{a_U}\right) = & 0.18 \cdot \exp\left(-3.2 \cdot \left(\frac{r}{a_U}\right)\right) + 0.51 \cdot \exp\left(-0.94 \cdot \left(\frac{r}{a_U}\right)\right) + \\ & 0.28 \cdot \exp\left(-0.4 \cdot \left(\frac{r}{a_U}\right)\right) + 0.28 \cdot \exp\left(-0.2 \cdot \left(\frac{r}{a_U}\right)\right) \end{aligned} \quad (\text{A.4})$$

$$a_U = \frac{0.88544 a_0}{\left(Z_1^{0.23} + Z_2^{0.23}\right)} \quad (\text{A.5})$$

Da die Berechnung des Winkels durch die komplizierte Form von $V(r)$ langwierig und zeitaufwendig ist, wurde von Biersack et al [147] zur Verminderung der CPU-Rechenzeit das Konzept des sog. *Scattering Triangle* (Abbildung A.6) entwickelt.

Die Idee des Scattering Triangles besteht darin, die Ablenkung des Projektils durch ein Dreieck mit dem Öffnungswinkel $\Theta/2$ zu bestimmen. Die Hypotenuse setzt sich aus dem geringsten Abstand r_0 und der Summe der Krümmungsradien ($\rho = \rho_1 + \rho_2$) der Trajektorien am Punkt r_0 zusammen. Die Ankathete besteht aus dem Stoßparameter P , der Summe der Krümmungsradien und zusätzlich einem kleinen Korrekturterm ($\delta = \delta_1 + \delta_2$), welcher die Abweichung der Krümmungsradien von der Bahnkurve $r(t)$ kompensiert.

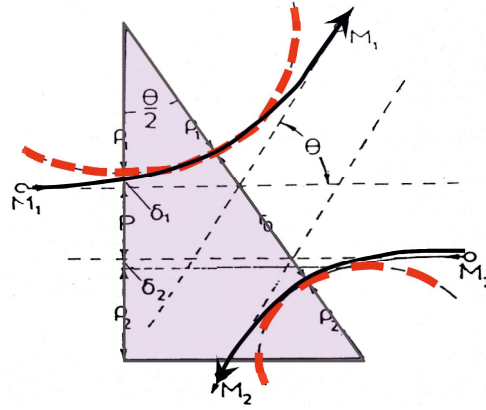


Abbildung A.6: Scattering Triangle im Schwerpunktsystem. Die Ablenkung des Projektils wird durch ein Dreieck angenähert, dessen Seitenlängen sich u. a. aus kürzestem Abstand, Stoßparameter und Krümmungsradien der Trajektorien am Punkt des kürzesten Abstands zusammensetzen.

Aus der Definition des Cosinus kann so eine Formel für den Ablenkungswinkel Θ aufgestellt werden:

$$\cos\left(\frac{\Theta}{2}\right) = \frac{\rho + P + \delta}{\rho + r_0} \quad (\text{A.6})$$

r_0 (Gleichung (A.7)) und ρ (Gleichung (A.8)) lassen sich wie folgt aus dem universellen Potential $V(r)$ und der Energie im Schwerpunktsystem E_C bestimmen:

$$1 - \frac{V(r)}{E_C} - \left(\frac{P}{r_0}\right)^2 = 0 \quad (\text{A.7})$$

$$\rho = \frac{2[E_C - V(r_0)]}{-V'(r_0)} \quad (\text{A.8})$$

Die einzige Unbekannte ist nun noch in Gleichung (A.6) der Fitparameter δ , welcher durch Approximation an das universelle Potential $V(r)$ festgelegt wird.

Durch Einsetzen von Gleichung (A.7) und Gleichung (A.8) in Gleichung (A.6) kann der Ablenkungswinkel Θ bestimmt werden. Mit diesem Winkel können sowohl die beim Stoß übertragende Energie $T(\Theta)$ als auch nach Rücktransformation ins Laborsystem der resultierende Streuwinkel \mathcal{G}

$$T(\Theta) = \frac{4M_1M_2}{(M_1 + M_2)^2} E_p \cdot \sin\left(\frac{\Theta}{2}\right) \quad (\text{A.9})$$

$$\mathcal{G} = \arctan\left[\frac{\sin \Theta}{\cos \Theta + M_1/M_2}\right] \quad (\text{A.10})$$

berechnet werden. Der Azimutwinkel $\phi = 2\pi R_n$ wird durch eine Zufallszahl $R_n \in [0,1]$ festgelegt. Zwischen 2 Stoßprozessen driften die bewegten Teilchen durch den Festkörper. Die mittlere freie Weglänge¹⁰ L ist in SRIM nicht konstant, sondern wird ebenfalls mithilfe von Zufallszahlen bestimmt. Hierzu wird zunächst die maximale mittlere freie Weglänge (MFW) λ bestimmt, und diese dann mit einem Faktor aus dem Intervall $[0,1]$ multipliziert. λ kann aus folgender Gesetzmäßigkeit gewonnen werden

$$\pi(P_{\max})^2 \cdot \lambda = N^{-1} \quad (\text{A.11})$$

wobei N die atomare Teilchendichte ist und $\pi(P_{\max})^2$ dem totalen Streuquerschnitt σ entspricht. Um die MFW zu bestimmen, muss zunächst der maximale Stoßparameter P_{\max} bekannt sein. Der maximale Stoßparameter impliziert wiederum einen minimalen Ablenkwinkel Θ_{\min} . Dieser kann mithilfe von Gleichung (A.9) bestimmt werden, wenn ein minimaler Energietransfer T_{\min} festgelegt wird, welcher in SRIM meist zwischen $T_{\min} = 1\text{-}5$ eV gewählt wird.

Über Θ_{\min} kann nun nach Leibfried in der Stoßnäherung P_{\max} bestimmt werden:

$$\sin^2\left(\frac{\Theta_{\min}}{2}\right) = a \cdot \frac{f(P_{\max}/a)}{2P_{\max}\varepsilon} \quad (\text{A.12})$$

$$\varepsilon = \frac{a_U}{Z_1 Z_2 e^2} E_C \quad (\text{A.13})$$

ε (reduzierte Energie im cgs-System) ist hier die auf das Coulombpotential an der Stelle der Abschirmlänge normierte Schwerpunktenergie E_C und $f(P/a)$ eine vom universellen Potential abhängige Funktion. Da Gleichung (A.12) analytisch nicht lösbar ist, wird sie numerisch gelöst und an eine analytische Funktion angepasst. Dies ergibt:

$$P_{\max} = \frac{a}{\left[\xi + \xi^{0.5} + 0.125 \cdot \xi^{0.1}\right]} \quad (\text{A.14})$$

ξ ist hier eine Konstante und ist definiert als: $\xi = \left(\frac{\varepsilon \varepsilon_{\min}}{1} \cdot \frac{(M_1 + M_2)^2}{4M_1 M_2}\right)^{1/2}$.

Aus den vorhergegangenen Rechnungen können nun die Kenngrößen der Teilchendynamik in Festkörpern, die sog. Nuclear und Electronic Stopping Power Density $S_{n/e}$, also der jeweilige Energieverlust pro Streckeneinheit und pro Teilchen berechnet werden. Der Ener-

¹⁰ Da wir uns mit unseren Simulationen in einem low energy regime befinden, soll nachfolgend der Fall für kleine Energien (keV) skizziert werden. Die Physik ändert sich, wenn große Energien (MeV) gewählt werden.

gieverlust durch Stöße kann durch folgende Gesetzmäßigkeit (Gleichung (A.15)) bestimmt werden:

$$S_n(E_p) = \frac{1}{N} \frac{dE_p}{dx} \Big|_{nucl} = \int_0^\infty T(E_p, P) d\sigma = \int_0^\infty T(E_p, P) 2\pi P dP \quad (\text{A.15})$$

$d\sigma = 2\pi P dP$ ist hier der differentielle Stoßquerschnitt, P der Stoßparameter und T die in Gleichung (A.9) definierte übertragene Energie, welche direkt von E_p und über Θ indirekt von P abhängt. Um eine analytische Lösung für Gleichung (A.15) zu finden, wird diese für verschiedene Energien numerisch integriert und dann durch eine Schar an berechneten Lösungen ein analytischer Fit gelegt. Damit dieser für alle Projektil-Target-Kombinationen gültig ist, wird wieder auf die reduzierte Energie ε (A.13) zurückgegriffen. Die Fitfunktion hat die Form:

$$S_n(\varepsilon) = \frac{\ln(1 + a\varepsilon)}{2(\varepsilon + b\varepsilon^c + d\varepsilon^{1/2})} \quad (\text{A.16})$$

Nach Einsetzen von a , b , c und d , welche als Fitparameter fungieren, erhält man als finale Form¹¹ für die Nuclear Stopping Power:

$$S_n(\varepsilon) = \frac{\ln(1 + 1.1383\varepsilon)}{2[\varepsilon + 0.01321\varepsilon^{0.2122} + 0.19593\varepsilon^{1/2}]} \quad (\text{A.17})$$

Beim electronic Stopping unterscheidet SRIM bei der Berechnung der Electronic Stopping Power zunächst zwischen leichten und schweren Ionen. Im ersten Fall (H- und He-Ionen) wird lediglich die Wechselwirkung eines geladenen Projektil-Kerns mit den Festkörperelektronen betrachtet. Im Zweiten hingegen werden zusätzlich zur Wechselwirkung des Projektil-Kerns mit den Festkörperelektronen noch die kernnahen Elektronen im Projektil berücksichtigt, welche eine Abschirmung der Kernladung bewirken und so zu einer effektiven Kernladung führen. Im für uns interessanten letzteren Fall wird darüber hinaus zwischen drei grob trennbaren Geschwindigkeitsbereichen unterschieden, in welchen die Ionen- (v_p) und Elektronengeschwindigkeit (v_F = Fermi-Geschwindigkeit) verglichen werden.

- High Velocity Heavy Ions: $v_p > 3 \cdot v_F$
- Medium Velocity Heavy Ions: $v_F < v_p < 3 \cdot v_F$
- Low Velocity Heavy Ions: $v_p < v_F$

¹¹ Diese Formel ist nur für kleine Energien mit $\varepsilon \leq 30$, wie wir sie in unserem Fall haben, gültig. Bei größeren Energien muss ein anderer Formalismus zu Rate gezogen werden. Näheres dazu siehe [25].

In unserem Fall $\text{Ar} \rightarrow \text{Ag}$ mit Energien bis maximal 15 keV befinden wir uns im Fall kleiner Geschwindigkeiten ($v_p = 2.68 \cdot 10^5 \text{ m/s} < v_F = 1.39 \cdot 10^6 \text{ m/s}$), in welchem die Elektronen schneller sind als das Projektil. Hier verwendet SRIM das Lindhard-Scharff Modell des freien Elektronengases (siehe Kapitel 2.1). Somit ergibt sich folgender Zusammenhang:

$$S_e(v_p) = \frac{1}{N} \left. \frac{dE_p}{dx} \right|_e = \frac{1}{N} \kappa v_p \quad (\text{A.18})$$

Dieser Ansatz funktioniert für Metalle aufgrund des Elektronengascharakters der Leitungsbandelektronen recht gut, bei Halbleitern kommt es zu Abweichungen aufgrund der Bandlücke. Hier wird die Abhängigkeit zur Driftgeschwindigkeit auf $v_p^{0.75}$ abgeschwächt.

Abschließend können nun die numerischen Werte für Electronic und Nuclear Stopping bestimmt werden (siehe Abbildung A.7). Dies ist ein Ausschnitt aus Abbildung 2.1 in Kapitel 2.1.

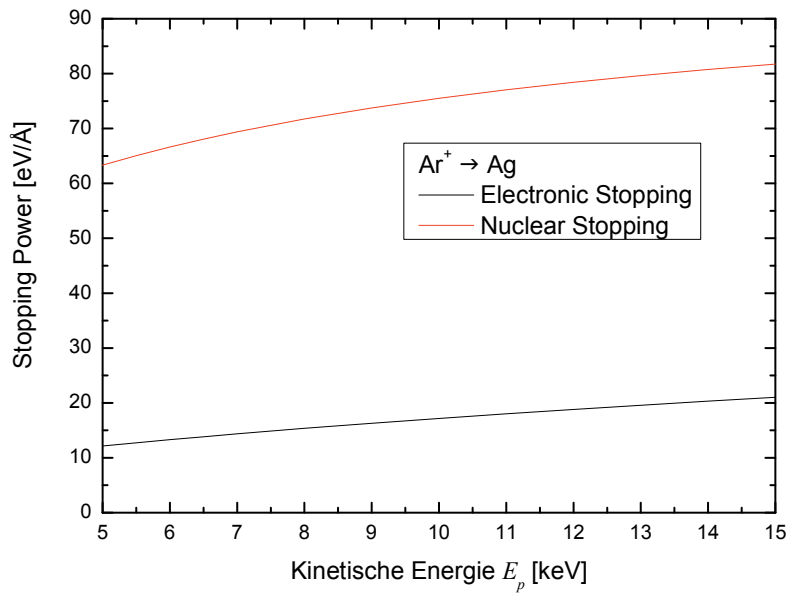


Abbildung A.7: Mit SRIM berechnete Nuclear und Electronic Stopping Power für den Fall $\text{Ar} \rightarrow \text{Ag}$ in dem von uns untersuchten Energieintervall 5-15 keV.

Wir zu erkennen, ist der qualitative Verlauf von Nuclear und Electronic Stopping nahezu identisch. Der numerische Wert von $(dE_p/dx)|_e$ ist hier im Mittel um einen Faktor 4.5 kleiner als der Wert von $(dE_p/dx)|_n$.

A.3 Winkelverteilung der Projektile

Da der größte Energieübertrag laut Gleichung (2.10) entlang der Bewegungsrichtung des Projektils stattfindet, bleibt es zu klären, in welche Richtung sich das Projektil zum Zeitpunkt der elektronischen Anregung bewegt. Grundsätzlich wird ein Projektil beim Eintritt in den Festkörper als Folge des Nuclear Stopping durch Stöße mit anderen Atomen Richtungsänderungen unterworfen. Biersack et al. [133] haben dazu ein Modell entwickelt, welches in diesem Abschnitt vorgestellt und auf unsere Projektil-Target-Kombination übertragen werden soll. In diesem wird die momentane Flugrichtung des Projektils als ein Zeiger auf eine Kugeloberfläche dargestellt, welcher auf dieser Oberfläche den momentanen Flugwinkel relativ zum Einschusswinkel visualisiert.

Im Allgemeinen kann zwischen drei Phasen der Projektilstreuung unterschieden werden:

1. Beim Eintritt in den Festkörper ist die Winkelverteilung des Projektils deltaförmig in Vorwärtsrichtung ausgeprägt mit $\varphi = 0^\circ$ und $\vartheta = 90^\circ$.
2. Nach einigen Stößen wird das Projektil abgebremst und seine Winkelverteilung verbreitert sich diffusionsartig und bildet eine kegelförmige Verteilung mit den Öffnungswinkeln $\Delta\varphi$ und $\Delta\vartheta$.
3. Ab einer gewissen Anzahl an Stößen weißt das Projektil keine Vorzugsrichtung mehr auf. Dieser Zustand wird meist gegen Ende der Projektilbewegung erreicht. Hier sind alle Richtungen gleich wahrscheinlich die Bewegungsrichtung wird nicht mehr von der ursprünglichen Einschlagrichtung beeinflusst.

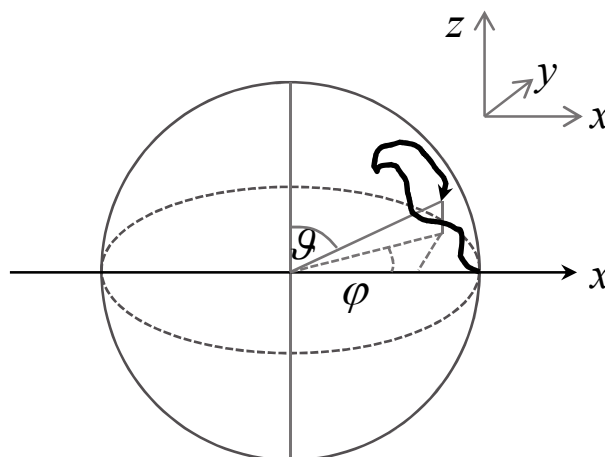


Abbildung A.8: Richtungsänderung eines Projektils während des Bremsvorgangs. Zu Beginn fliegt das Projektil in Richtung der x-Achse. Im Zuge der Streuung und Abbremsung vollführt der Richtungsvektor auf der Kugeloberfläche einen Random-Walk.

Zur Beschreibung der Änderung der Winkelverteilung w auf der Kugeloberfläche (Abbildung A.8) lässt sich eine diffusionsähnliche Gleichung aufstellen:

$$\frac{\partial w}{\partial \tau} = \frac{1}{\sin \varphi} \frac{\partial}{\partial \varphi} \left(\sin \varphi \frac{\partial w}{\partial \varphi} \right) \quad (\text{A.19})$$

τ ist hier äquivalent zum diffusiven Parameter der gewöhnlichen Diffusion. In unserem Fall ist τ ein Maß dafür, wie viel Energie das Projektil bereits verloren hat. Durch die Stöße mit und die Streuung an Festkörperatomen ändert sich permanent der Winkel relativ zum Eintrittswinkel in den Festkörper. Diese Änderungen des Winkels führen zu veränderten Positionen des Projektil-Richtungsvektors auf der Oberfläche der Einheitskugel (siehe Abbildung A.8). Die wechselnden Positionen des Richtungsvektors können als Zufallsbewegungen auf der Kugeloberfläche beschrieben werden, welche mithilfe der 2-dimensionalen Einsteinbeziehung in der Oberflächendiffusion behandelt werden können:

$$\delta \tau = \frac{1}{4} \delta \varphi^2 \quad (\text{A.20})$$

$\delta \tau$ entspricht hier wieder dem diffusen Parameter, während $(r \cdot \delta \varphi)^2$ die mittlere quadratische Strecke auf der Einheitskugel ($r=1$) beschreibt, welche der Richtungsvektor des Projektils zurücklegt. Im Rahmen der Kleinwinkelnäherung bei den Stoßprozessen ist es durch die Transformation ins Schwerpunktsystem ($\varphi \rightarrow \Theta$) und den Zusammenhang in Gleichung (A.9) möglich obige Gleichung (A.20) für i aufeinander folgende Stöße folgendermaßen zu schreiben:

$$\delta \tau \approx \frac{1}{4} \frac{M_2}{M_1} \sum_i \frac{T_i}{E_p} \quad (\text{A.21})$$

Durch die Verwendung von $S_n(E_p)$ und $S_e(E_p)$ als Nuclear und Electronic Stopping Power lässt sich Gleichung (A.21) final umschreiben in:

$$\tau = -\frac{1}{4} \frac{M_2}{M_1} \int_{E_0}^{E_p} \frac{S_n(E_p')}{S_n(E_p') + S_e(E_p')} \frac{dE_p'}{E_p'} \quad (\text{A.22})$$

Um die Winkelverteilung w in Gleichung (A.19) zu erhalten, wird zunächst eine Variablensubstitution ($\eta = \cos \varphi$) durchgeführt. Damit lässt sich die Gleichung schreiben als:

$$\frac{\partial w}{\partial \tau} = \frac{\partial}{\partial \eta} \left[(1 - \eta^2) \frac{\partial w}{\partial \eta} \right] \quad (\text{A.23})$$

Als Lösungsansatz für Gleichung (A.23) wird im Folgenden die Entwicklung in ein Set von orthogonalen Eigenfunktionen benutzt:

$$w(\eta, \tau) = \sum_{l=0}^{\infty} a_l P_l(\eta) e^{-l(l+1)\tau} \quad (\text{A.24})$$

Die Eigenfunktionen der sphärischen Diffusion sind hier die Legendre-Polynome $P_l(\eta)$. Mit der Anfangsbedingung, dass das Projektil zu Beginn ($\tau=0$) in x-Richtung fliegt, ergibt sich als Lösung für Gleichung (A.23):

$$w(\eta, \tau) = \sum_{l=0}^{\infty} \left(l + \frac{1}{2}\right) P_l(\eta) e^{-l(l+1)\tau} \quad (\text{A.25})$$

Der für die Winkelverteilung der Projektile wichtige Parameter τ kann für den Fall von Argon auf Silber mithilfe von Gleichung (A.22) und den Daten aus Abbildung A.7 bestimmt werden.

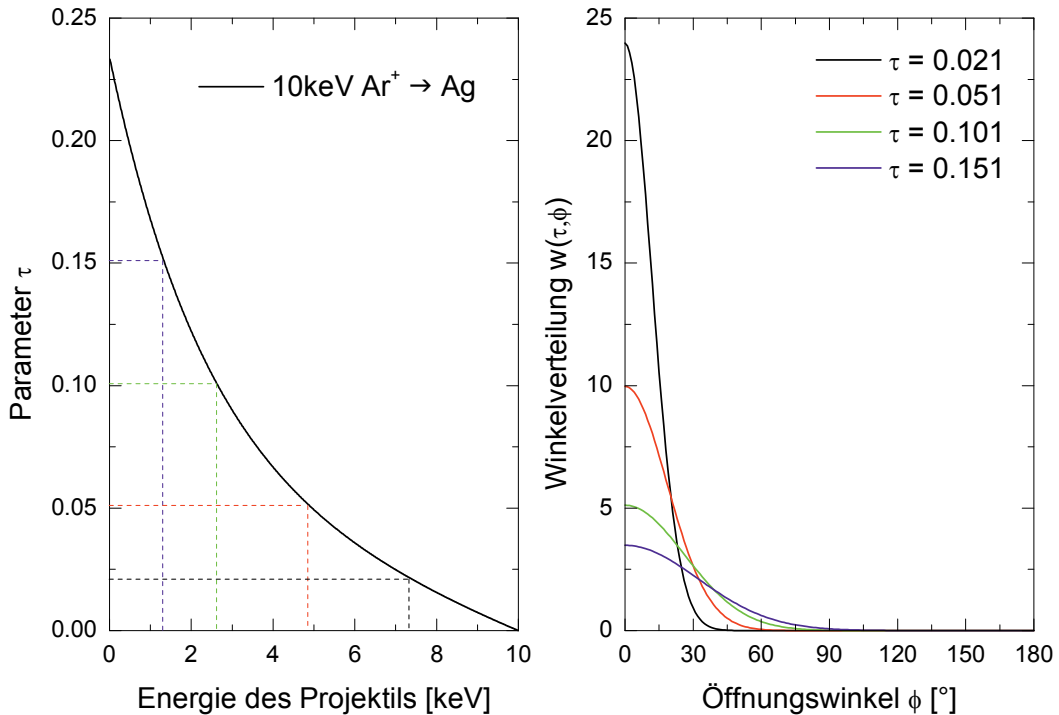


Abbildung A.9: Zusammenhang zwischen Parameter τ und der resultierenden Winkelverteilung $w(\tau, \phi)$.

In Abbildung A.9 ist der Verlauf des Parameters τ für eine Primärenergie von 10 keV und die sich für 4 verschiedene Werte von τ ergebenden Winkelverteilungen skizziert. Wie zu erkennen, wird die Winkelverteilung der Projektile für abnehmende Projektilenergie (und somit zunehmende Flugstrecke im Festkörper) immer isotroper, was ebenfalls einen Einfluss auf die Flugrichtung der durch Stöße angeregten Elektronen hat. Es ist zu erwarten,

dass nur die Elektronen die Flugrichtung der Projektile beibehalten, die kurze Zeit nach dem Einschlag vom Projektil angeregt werden. Je später die Anregung erfolgt, umso isotroper wird hier auch die Elektronenanregung.

Quellcode (Berechnung der Inneren Emission)

```

/* Numerische WKB-Simulation der MIM-Ströme
 * -----Erstellt von Detlef Diesing-----
 * -----Modifiziert von Christian Heuser-----
 */

#include <stdio.h>
#include <math.h>
#include <time.h>

#define m 9.109e-31
#define el 1.6019e-19
#define kB 1.3807e-23
#define hquer 1.05459e-34
#define epsnull 8.85e-12
#define pi 3.1415926535898
#define phi_Al 2.4
#define phi_Ag 3.9
#define Egap 6.7
#define d 2.5e-9
#define int_d 50
#define int_y 100
#define int_Ee 2000
#define E_F_Ag 5.5
#define E_F_Al 11.6
#define t_casc 6.2e-15
#define A_casc 1e-18

/* Definition des Potentials */
double V(double U, double z)
{
    double ausgabe;
    ausgabe=E_F_Al+phi_Al+((phi_Ag-phi_Al-U)/d*z);
    return ausgabe;
}

/*Definition der Barriere */
double barrier(double Ee, double y, double U, double z)
{
    double ausgabe;
    ausgabe=((Ee-V(U,z))*(Ee-V(U,z)+Egap)/Egap-Ee*(1-y)/2);
    return ausgabe;
}

/*Definition der Tunnelwahrscheinlichkeit */
double p(double Ee, double y, double U)
{
    double ausgabe,ausgabe1,Potentialbeitrag[int_d+1],breite,summe;
    int i,j;
    breite= (d-0)/int_d;
    summe=0.0;
    for(i=1;i<=int_d;i++)
    {
        if(barrier(Ee,y,U,i*breite)<0.0)
        {

```

```

        Potentialbeitrag[i]=barrier(Ee,y,U,i*breite);
    }
    else
    {
        Potentialbeitrag[i]=0.0;
    }
}
for(j=2;j<=int_d-1;j++)
{
    summe=summe+sqrt(-1.0*Potentialbeitrag[j]);
}
ausgabe=exp(-2*summe*breite*sqrt(2*m*el/(hquer*hquer)));
if(ausgabe>1e-140)
{
    ausgabe1=ausgabe;
}
else
{
    ausgabe1=1e-140;
}
return ausgabe1;
}

/*Definition der Ag-Fermiverteilungen */
double f_Ag(double Ee,double U, double Te)
{
    double ausgabe;
    ausgabe=1/(exp(el*(Ee-E_F_Al*pow((1-1/12*((3.1415*Te*kB)/(
    (2*el*E_F_Al)),2))+U)/(kB*Te))+1);
    return ausgabe;
}

/*Definition der Al-Fermiverteilung */
double f_Al(double Ee, double T0)
{
    double ausgabe;
    ausgabe=1/(exp(el*(Ee-E_F_Al)/(kB*T0))+1);
    return ausgabe;
}

/*Definition des Integranden */
double integrand(double Ee, double y, double U, double T0, double Te)
{
    double ausgabe;
    ausgabe=(f_Ag(Ee,U,Te)-f_Al(Ee,T0))*p(Ee,y,U)*Ee;
    return ausgabe;
}

/*Definition der Maximumsfunktion */
double max(double a, double b)
{
    double ausgabe;
    if(a<b)
    {
        ausgabe=b;
    }
    else
    {
        ausgabe=a;
    }
}

```

```

    }
    return ausgabe;
}

/*Definition des Stromes zwischen den Schichten */
double j_3d(double U,double T0,double Te)
{
    FILE *fhd1,*fhd2,*fhd3;
    double zwischensumme,C,summe,temp,Enull,ausgabe,breite_y,breite_Ee,
    y_koord[int_y+1],Ee_koord[int_Ee+1];
    int i,j,n;
    char spektrum[50];
    n=sprintf(spektrum,"Spektrum_%g.dat",Te);
    fhd2=fopen(spektrum,"a+");
    C=pow(el,2)*(2*pi*el*m)/(pow(hquer*2*pi,3));
    Enull=E_F_Al-E_F_Ag;
    summe=0.0;
    breite_y=2.0/int_y;
    breite_Ee=((30-U)-max(0,Enull-U))/int_Ee;
    for(i=1;i<=int_y;i++)
    {
        y_koord[i]=-1.0+i*breite_y;
    }
    for(j=1;j<=int_Ee;j++)
    {
        Ee_koord[j]=max(0,Enull-U)+j*breite_Ee;
    }
    for(j=1;j<=int_Ee;j++)
    {
        zwischensumme=0.0;
        for(i=1;i<=int_y;i++)
        {
            temp=integrand(Ee_koord[j],y_koord[i],U,T0,Te)*breite_y
            *breite_Ee*C;
            summe=summe+temp;
            zwischensumme=zwischensumme+temp;
        }
        fprintf(fhd2,"%g %g %g\n",U,Ee_koord[j],zwischensumme);
    }
    fclose(fhd2);
    return(summe);
}

/*Definition der Ausbeute */
double Gamma3d(double U,double T0,double Te)
{
    double ausgabe;
    ausgabe=j_3d(U,T0,Te)/el*t_casc*A_casc;
    return ausgabe;
}

/*Definition der spektroskopischen Ausbeute */
/*-----HAUPTPROZEDUR-----*/
int main(void)
{
    FILE *fhd1,*fhd2,*fhd3;
    int i,j,h,l,k;
    char spektrum[50],ausbeute[50],nausbeute[50];
    double nullwert,Enull,ausbeute3d,nausbeute3d,U[1000],E[3000],
    Te[100];

```

```
Enull=E_F_Al-E_F_Ag;
for (j=0;j<=50;j++)
{
    Te[j]=300+j*300;
    h=sprintf(ausbeute,"Ausbeute_%g.dat",Te[j]);
    fhd3=fopen(ausbeute,"w");
    l=sprintf(nausbeute,"normierte_Ausbeute_%g.dat",Te[j]);
    fhd1=fopen(nausbeute,"w");
    fprintf(fhd1,"U_%g      normierte_Ausbeute_%g \n",Te[j],Te[j]);
    k=sprintf(spektrum,"Spektrum_%g.dat",Te[j]);
    fhd2=fopen(spektrum,"w");
    fprintf(fhd2,"U_%g      Ewert_%g      spektrum_%g \n",Te[j],
    Te[j],Te[j]);
    fclose(fhd2);
    nullwert=Gamma3d(0.0,300,Te[j]);
    for (i=0;i<=5;i++)
    {
        U[i]=-0.05+i*0.025;
        ausbeute3d=Gamma3d(U[i],300,Te[j]);
        nausbeute3d=ausbeute3d/nullwert;
        printf("Durchlauf %i mit Te %g , U %g und Ausbeute %g
        und normierter Ausbeute %g",i,Te[j],-1*U[i],
        ausbeute3d,nausbeute3d);
        fprintf(fhd1,"%g %g \n",U[i],nausbeute3d);
        fprintf(fhd3,"%g %g \n",U[i],ausbeute3d);
    }
    fclose(fhd1);
    fclose(fhd3);
}
```

Quellcode (Berechnung der Anregungsverteilung)

```

/* Numerische Bestimmung der Beschusswinkelabhängigkeit
*-----Erstellt von Christian Heuser-----
*-----Basis ist der MIM-Code von Detlef Diesing-----
*/

#include <stdio.h>
#include <math.h>

#define LAMBDA 1e-8
#define POSITION 0
#define DICKE 3e-8
#define PI 3.1415926535898
#define INT_ALPHA1 5000
#define INT_ALPHA2 5000
#define EPS 1.0E-10

/* Definition der Anregungsverteilung */
double G(double alphashift, double alpha, double w, double A)
{
    double ausgabe;
    //ausgabe=A/(w*sqrt(0.5*PI))*(exp(-2*((alpha+alphashift)/w)*((alpha+alphashift)/w))+exp(-2*((alpha-alphashift)/w)*((alpha-alphashift)/w)));
    ausgabe=A*(1/(exp(-(alpha+alphashift)/w)+1)*1/(exp((alpha-alphashift)/w)+1));
    return ausgabe;
}

/*Definition des Abschwächungsfaktors */
double Expo(double alpha1, double alpha2, double Theta)
{
    double ausgabe,cos1,cos2;
    cos1=cos((alpha1+Theta)*PI/180);
    cos2=cos(alpha2*PI/180);
    if (fabs(cos1)<EPS || fabs(cos2)<EPS)
    {
        ausgabe=0;
    }
    else{
        ausgabe=exp(-(DICKE-POSITION)/(LAMBDA*cos1*cos2));
    }
    return ausgabe;
}

/*Definition der Eindringwahrscheinlichkeit */
double Penetration(double Theta)
{
    double ausgabe,P[86];
    int i;
    i=(int)Theta;
    P[0]=0.894;
    P[5]=0.889;
    P[10]=0.876;
    P[15]=0.878;

```

```

    P[20]=0.85;
    P[25]=0.862;
    P[30]=0.853;
    P[35]=0.837;
    P[40]=0.813;
    P[45]=0.812;
    P[50]=0.757;
    P[55]=0.729;
    P[60]=0.703;
    P[65]=0.622;
    P[70]=0.582;
    P[75]=0.531;
    P[80]=0.47;
    P[85]=0.325;
    ausgabe=P[i];
    return ausgabe;
}

/*Definition des Integranden */
double integrand(double Theta, double alpha1, double alpha2,
    double alphashift, double A, double w)
{
    double ausgabe;
    ausgabe=G(alphashift,alpha1,w,A)*G(alphashift,alpha2,w,A)*
    Expo(alpha1,alpha2,Theta)*Penetration(Theta)*1/cos(Theta);
    return ausgabe;
}

/*Numerische Berechnung der Winkelverteilung */
double angular_distribution(double Theta,double A,double w,
    double alphashift)
{
    double summe,zwischensumme,temp,breite_alpha1,breite_alpha2
    ,alpha1_koord[INT_ALPHA1+1],alpha2_koord[INT_ALPHA2+1];
    int i,j;
    breite_alpha1=180.0/INT_ALPHA1;
    breite_alpha2=180.0/INT_ALPHA2;
    for(i=1;i<=INT_ALPHA1;i++)
    {
        alpha1_koord[i]=-90-Theta+i*breite_alpha1;
    }
    for(j=1;j<=INT_ALPHA2;j++)
    {
        alpha2_koord[j]=-90+j*breite_alpha2;
    }
    summe=0.0;
    for(j=1;j<=INT_ALPHA2;j++)
    {
        zwischensumme=0.0;
        for(i=1;i<=INT_ALPHA1;i++)
        {
            temp=integrand(Theta,alpha1_koord[i],alpha2_koord
            [j],alphashift,A,w)*breite_alpha1*breite_alpha2;
            zwischensumme=zwischensumme+temp;
            summe=summe+temp;
        }
    }
    return(summe);
}

```



```

/*Ausgabe der normierten beschusswinkelinduzierten Ausbeute */
/*-----HAUPTPROZEDUR-----*/
int main(void)
{
    FILE *fhd3;
    int i,j,h,q;
    char Double_Gauss[50];
    double nullwert,nAusbeute,w[51],alphashift[51],Theta[86],A;
    A=1;
    for(i=5;i<=10;i++)
    {
        w[i]=0+i*1;
        for(j=1;j<=19;j++)
        {
            alphashift[j]=0+j*1;
            h=sprintf(Double_Gauss,"nAusbeute_DoubleFermi_w_%g_alph
            ashift_%g.dat",w[i],alphashift[j]);
            fhd3=fopen(Double_Gauss,"w");
            nullwert=angular_distribution(0,A,w[i],alphashift[j]);
            for(q=0;q<=17;q++)
            {
                Theta[q]=0+q*5;
                nAusbeute=angular_distribution(Theta[q],A,w[i],
                alphashift[j])/nullwert;
                printf("Durchlauf Theta = %g , w = %g , alphashift
                = %g und nAusbeute = %g soqie nullwert = %g
                sowie integrand =
                %g\n",Theta[q],w[i],alphashift[j]
                ,nAusbeute,nullwert,integrand(0,90,90,30,1,15));
                fprintf(fhd3,"%g %g \n",Theta[q],nAusbeute);
            }
            fclose(fhd3);
        }
    }
}

```

Literaturverzeichnis

- [1] Z. Sroubek, *Electron Emission from Solids Bombarded by Slow Neutrals*, Physical Review Letters, **78** (1997) 3209.
- [2] Z. Sroubek, X. Chen, J.A. Yarmoff, *Ion formation and kinetic electron emission during the impact of slow atomic metal particles on metal surfaces*, Physical Review B, **73** (2006) 045427.
- [3] C. Potiriadis, A. Clouvas, H. Rothard, N. Pauly, A. Dubus, M. Rösler, *Influence of the target thickness on the backward and forward electron emission characteristics induced by protons incident on thin carbon foils*, Nuclear Instruments and Methods in Physics Research Section B, **230** (2005) 466–470.
- [4] H.C. Card, E.H. Rhoderick, *Studies of tunnel MOS diodes I. Interface effects in silicon Schottky diodes*, Journal of Physics D: Applied Physics, **4** (1971) 1589.
- [5] H.C. Card, E.H. Rhoderick, *Studies of tunnel MOS diodes II. Thermal equilibrium considerations*, Journal of Physics D: Applied Physics, **4** (1971) 1602.
- [6] D. Diesing, G. Kritzler, M. Stermann, D. Nolting, A. Otto, *Metal/insulator/metal junctions for electrochemical surface science*, Journal of Solid State Electrochemistry, **7** (2003) 389–415.
- [7] S. Meyer, *Experimentelle Untersuchung zur kinetisch induzierten elektronischen Anregung in atomaren Stoßkaskaden*, Dissertation, Fakultät für Physik, Universität Duisburg-Essen (2006).
- [8] S. Meyer, D. Diesing, A. Wucher, *The use of MIM tunnel junctions to investigate kinetic electron excitation in atomic collision cascades*, Nuclear Instruments and Methods in Physics Research Section B, **230** (2005) 608–612.
- [9] T. Peters, *Wechselwirkung hochgeladener Ionen mit Oberflächen*, Dissertation, Fakultät für Physik, Universität Duisburg-Essen (2010).
- [10] J. Lörinčík, Z. Šroubek, M. Brunmayr, G. Kowarik, F. Aumayr, *Kinetic electron emission due to perpendicular impact of carbon ions on tungsten surfaces*, Applied Surface Science, **255** (2009) 6303–6307.
- [11] R.A. Baragiola, E.V. Alonso, A.O. Florio, *Electron emission from clean metal surfaces induced by low-energy light ions*, Physical Review B, **19** (1979) 121–129.

- [12] R.A. Baragiola, *Principles and mechanisms of ion induced electron emission*, Nuclear Instruments and Methods in Physics Research Section B, **78** (1993) 223–238.
- [13] R.A. Baragiola, E.V. Alonso, A. Oliva, A. Bonnano, F. Xu, *Fast electrons from slow atomic collisions*, Physical Review A, **45** (1992) 5286.
- [14] R.A. Baragiola, E.V. Alonso, J. Ferron, A. Oliva-Florio, *Ion-induced electron emission from clean metals*, Surface Science, **90** (1979) 240–255.
- [15] S. Meyer, C. Heuser, D. Diesing, A. Wucher, *Kinetic electronic excitation of solids by fast-particle bombardment*, Physical Review B, **78** (2008) 035428.
- [16] M.P. Ray, R.E. Lake, C.E. Sosolik, L.B. Thomsen, G. Nielsen, I. Chorkendorff, O. Hansen, *Subsurface excitations in a metal*, Physical Review B, **80** (2009) 161405.
- [17] D. Kovacs, A. Golczewski, G. Kowarik, F. Aumayr, D. Diesing, *Low-energy ion-induced electron emission in metal-insulator-metal sandwich structures*, Physical Review B, **81** (2010) 075411.
- [18] S. Ullah, A.H. Dogar, S. Hussain, A. Qayyum, *Monte Carlo study of the ion-induced electron current tunneling through a metal insulator metal junction*, Thin Solid Films, **519** (2011) 5486–5489.
- [19] W. Kaiser, L. Bell, *Direct investigation of subsurface interface electronic structure by ballistic-electron-emission microscopy*, Physical Review Letters, **60** (1988) 1406–1409.
- [20] L.D. Bell, M.H. Hecht, W.J. Kaiser, L.C. Davis, *Direct spectroscopy of electron and hole scattering*, Physical Review Letters, **64** (1990) 2679–2682.
- [21] R. Behrisch, *Sputtering by particle bombardment I: Physical Sputtering of Single-Element Solids*, Topics in Applied Physics, Springer-Verlag, (1981), pp. 281.
- [22] M.A. Nastasi, J.W. Mayer, J.K. Hirvonen, *Ion-Solid Interactions: Fundamentals and Applications*, 1. Auflage, Cambridge University Press (1996), pp. 99–110.
- [23] M. Lindenblatt, E. Pehlke, A. Duvenbeck, B. Rethfeld, A. Wucher, *Kinetic excitation of solids: The concept of electronic friction*, Nuclear Instruments and Methods in Physics Research Section B, **246** (2006) 333–339.
- [24] U. Fano, W. Lichten, *Interpretation of Ar^+ -Ar Collisions at 50 KeV*, Physical Review Letters, **14** (1965) 627–629.
- [25] J.F. Ziegler, J. Biersack, M.D. Ziegler, *SRIM: The stopping and range of ions in matter*, SRIM Company (2008).

- [26] A. Duvenbeck, O. Weingart, V. Buss, A. Wucher, *Electron promotion and electronic friction in atomic collision cascades*, New Journal of Physics, **9** (2007) 38.
- [27] J. Lindhard, M. Scharff, *Energy Dissipation by Ions in the kev Region*, Physical Review, **124** (1961) 128–130.
- [28] S. Tougaard, P. Sigmund, *Influence of elastic and inelastic scattering on energy spectra of electrons emitted from solids*, Physical Review B, **25** (1982) 4452–4466.
- [29] E.J. Sternglass, *Theory of Secondary Electron Emission by High-Speed Ions*, Physical Review, **108** (1957) 1.
- [30] Z.J. Ding, R. Shimizu, *A Monte Carlo modeling of electron interaction with solids including cascade secondary electron production*, Scanning, **18** (1996) 92–113.
- [31] R.H. Ritchie, J.C. Ashley, *The interaction of hot electrons with a free electron gas*, Journal of Physics and Chemistry of Solids, **26** (1965) 1689–1694.
- [32] E. Knoesel, A. Hotzel, M. Wolf, *Ultrafast dynamics of hot electrons and holes in copper: Excitation, energy relaxation, and transport effects*, Physical Review B, **57** (1998) 12812–12824.
- [33] M. Bauer, M. Aeschlimann, *Dynamics of excited electrons in metals, thin films and nanostructures: Frontiers in photoemission spectroscopy of solids and surfaces*, Journal of Electron Spectroscopy and Related Phenomena, **124** (2002) 225–243.
- [34] J.J. Quinn, *Range of Excited Electrons in Metals*, Physical Review, **126** (1962) 1453.
- [35] H. Kanter, *Slow-Electron Mean Free Paths in Aluminum, Silver, and Gold*, Physical Review B, **1** (1970) 522–536.
- [36] J.I. Juaristi, M. Rösler, F.J. García de Abajo, *Contribution of the excitation of conduction band electrons to the kinetic electron emission induced by slow ions in metals*, Physical Review B, **58** (1998) 15838–15846.
- [37] J. Ferrón, E.V. Alonso, R.A. Baragiola, A. Oliva-Florio, *Dependence of ion-electron emission from clean metals on the incidence angle of the projectile*, Physical Review B, **24** (1981) 4412–4419.
- [38] E.V. Alonso, R.A. Baragiola, J. Fern, M.M. Jakas, A. Oliva-Florio, *Z1 dependence of ion-induced electron emission from aluminum*, Physical Review B, **22** (1980) 80–87.

- [39] R.S. Chauhan, S. Kumar, R.P. Singh, A. Mandal, *Incident-angle dependence of ion-induced electron emission from Al & Co films using swift heavy ion*, Nuclear Instruments and Methods in Physics Research Section B, **266** (2008) 1780–1782.
- [40] I.N. Evdokimov, E.S. Mashkova, V.A. Molchanov, D.D. Odintsov, *Dependence of the Ion Electron Emission Coefficient on the Angle of Incidence*, physica status solidi (b), **19** (1967) 407–415.
- [41] K. Ohya, K. Nishimura, J. Kawata, I. Mori, *Incident-angle dependence of secondary electron emission from hydrogen-implanted carbon surfaces*, Journal of Nuclear Materials, **196-198** (1992) 699–702.
- [42] J. Kawata, K. Ohya, I. Mori, *Calculation of Incident Angle Dependence of Ion-Induced Kinetic Electron Emission from Aluminum*, Japanese Journal of Applied Physics Part 1 - Regular Papers Short Notes & Review Papers, **31** (1992) 2560–2564.
- [43] J. Lörinčík, Z. Šroubek, *Non-adiabatic electron excitation in ion-induced kinetic electron emission from metal surfaces*, Nuclear Instruments and Methods in Physics Research Section B, **164-165** (2000) 633–640.
- [44] J. Lörinčík, Z. Šroubek, H. Eder, F. Aumayr, H. Winter, *Kinetic electron emission from clean polycrystalline gold induced by impact of slow C^+ , N^+ , O^+ , Ne^+ , Xe^+ , and Au^+ ions*, Physical Review B, **62** (2000) 16116.
- [45] Z. Sroubek, *Kinetic electron emission from metals induced by impact of slow atomic particles*, Nuclear Instruments and Methods in Physics Research Section B, **268** (2010) 3377–3380.
- [46] S. Dushman, *Electron Emission from Metals as a Function of Temperature*, Physical Review, **21** (1923) 623–636.
- [47] A.T. Fromhold, *Quantum Mechanics for Applied Physics and Engineering*, Dover (1991), p. 213.
- [48] K.H. Gundlach, *Theory of metal-insulator-metal tunneling for a simple two-band model*, Journal of Applied Physics, **44** (1973) 5005–5010.
- [49] M. Lindenblatt, E. Pehlke, *Ab Initio Simulation of the Spin Transition during Chemisorption: H/Al(111)*, Physical Review Letters, **97** (2006) 216101.
- [50] A. Duvenbeck, *Computer Simulation of Electronic Excitation in Atomic Collision Cascades*, Dissertation, Fakultät für Physik, Duisburg-Essen (2006).

- [51] M. Lindenblatt, R. Heinrich, A. Wucher, B.J. Garrison, *Self-sputtering of silver by mono- and polyatomic projectiles: A molecular dynamics investigation*, The Journal of Chemical Physics, **115** (2001) 8643–8654.
- [52] D.R. Lide, *CRC handbook of chemistry and physics: a ready-reference book of chemical and physical data*, CRC Press (2004).
- [53] D. Diesing, D. Kovacs, K. Stella, C. Heuser, *Characterization of atom and ion-induced internal electron emission by thin film tunnel junctions*, Nuclear Instruments and Methods in Physics Research Section B, **269** (2011) 1185–1189.
- [54] D.A. Kovacs, T. Peters, C. Haake, M. Schleberger, A. Wucher, A. Golczewski, F. Aumayr, D. Diesing, *Potential electron emission induced by multiply charged ions in thin film tunnel junctions*, Physical Review B, **77** (2008).
- [55] N.W. Ashcroft, N.D. Mermin, *Festkörperphysik*, 2 Auflage., Oldenbourg (2005), pp. 54-59.
- [56] A. Duvenbeck, B. Weidtmann, A. Wucher, *Predicting Kinetic Electron Emission in Molecular Dynamics Simulations of Sputtering*, The Journal of Physical Chemistry C, **114** (2010) 5715–5720.
- [57] A. Duvenbeck, S. Hanke, B. Weidtmann, A. Wucher, *A molecular dynamics investigation of kinetic electron emission from silver surfaces under varying angle of projectile impact: Computer Simulations of Radiation Effects in Solids*, Nuclear Instruments and Methods in Physics Research Section B, **269** (2011) 1661–1664.
- [58] Y. Jelialzova, M. Kayser, B. Mildner, A.W. Hassel, D. Diesing, *Temperature stability of thin anodic oxide films in metal/insulator/metal structures: A comparison between tantalum and aluminium oxide*, Thin Solid Films, **500** (2006) 330–335.
- [59] K. Stella, D.A. Kovacs, D. Diesing, W. Brezna, J. Smoliner, *Charge Transport Through Thin Amorphous Titanium and Tantalum Oxide Layers*, Journal of the Electrochemical Society, **158** (2011) 65-74.
- [60] A.M. Bernhart, M. R. Kaspers, C.A. Bobisch, R. Möller, *BEEM-Daten*, Personal Communication, (18.03.2010)
- [61] L.D. Bell, *Evidence of Momentum Conservation at a Nonepitaxial Metal/Semiconductor Interface Using Ballistic Electron Emission Microscopy*, Physical Review Letters, **77** (1996) 3893.

- [62] I.A. Brytov, Y.N. Romashchenko, *X-ray spectroscopic investigation of the electron structure of silicon and aluminum oxides*, Soviet Physics, Solid State, **20** (1978) 384–389.
- [63] W.H. Rippard, A.C. Perrella, F.J. Albert, R.A. Buhrman, *Ultrathin Aluminum Oxide Tunnel Barriers*, Physical Review Letters, **88** (2002) 046805.
- [64] A. Bannani, C.A. Bobisch, M. Matena, R. Möller, *Ballistic electron emission spectroscopy on Ag/Si devices*, Nanotechnology, **19** (2008) 375706.
- [65] A.M. Bernhart, *Mikroskopie mit ballistischen Elektronen und Löchern*, Dissertation, Fakultät für Physik, Universität Duisburg-Essen (2012).
- [66] K. Wittmaack, *Beam formation in a triode ion gun*, Nuclear Instruments and Methods, **118** (1974) 99–113.
- [67] K. Wittmaack, *Low energy ion beam transport through apertures*, Nuclear Instruments and Methods, **143** (1977) 1–6.
- [68] K. Wittmaack, W. Wach, *Determination of ion source pressure from discharge characteristics*, Nuclear Instruments and Methods, **143** (1977) 7–12.
- [69] C.E. Sosolik, A.C. Lavery, E.B. Dahl, B.H. Cooper, *A technique for accurate measurements of ion beam current density using a Faraday cup*, Review of Scientific Instruments, **71** (2000) 3326.
- [70] D. Hasselkamp, *Particle induced electron emission II*, Springer-Verlag (1992).
- [71] H. Eder, W. Messerschmidt, H. Winter, F. Aumayr, *Electron emission from clean gold bombarded by slow Au^{q+} ($q=1-3$) ions*, Journal of Applied Physics, **87** (2000) 8198–8200.
- [72] R.G. Musket, W. McLean, C.A. Colmenares, D.M. Makowiecki, W.J. Siekhaus, *Preparation of atomically clean surfaces of selected elements: A review*, Applications of Surface Science, **10** (1982) 143–207.
- [73] H. Lüth, *Surfaces and Interfaces of Solid Materials*, 3. Auflage, Springer-Verlag (1998), p. 36.
- [74] G.S. Anderson, G.K. Wehner, *Atom Ejection Patterns in Single-Crystal Sputtering*, Journal of Applied Physics, **31** (1960) 2305.
- [75] G.K. Wehner, *Controlled Sputtering of Metals by Low-Energy Hg Ions*, Physical Review, **102** (1956) 690–704.

- [76] T. Nagayama, K. Noguchi, S. Sasaki, R. Shimizu, *Ejection pattern of sputtered atoms from Cu(100) under 10 keV Ar⁺ ion bombardment*, Nuclear Instruments and Methods in Physics Research Section B, **39** (1989) 91–94.
- [77] A. Wucher, M. Watgen, C. Mößner, H. Oechsner, B.J. Garrison, *Energy dependent studies of anisotropic atomic sputtering of Ni(111)*, Nuclear Instruments and Methods in Physics Research Section B, **67** (1992) 531–535.
- [78] R.P. Webb, D.E. Harrison, *Computer Simulation of Pit Formation in Metals by Ion Bombardment*, Physical Review Letters, **50** (1983) 1478–1481.
- [79] J. Vrijmoeth, P.M. Zagwijn, J.W.M. Frenken, J.F. van der Veen, *Monolayer resolution in medium-energy ion-scattering experiments on the NiSi₂(111) surface*, Physical Review Letters, **67** (1991) 1134–1137.
- [80] D.W. Moon, Y. Ha, H.K. Kim, K.J. Kim, H.S. Kim, J.Y. Lee, S. Kim, *Low sputter damage of metal single crystalline surfaces investigated with medium energy ion scattering spectroscopy*, Applied Surface Science, **150** (1999) 235–243.
- [81] G.J. Ogilvie, *The surface structure of silver crystals after argon-ion bombardment*, Journal of Physics and Chemistry of Solids, **10** (1959) 222–228.
- [82] G.J. Ogilvie, A. Thompson, *Influence of temperature and bombardment rate on disorientation of silver single crystals by ion bombardment*, Journal of Physics and Chemistry of Solids, **17** (1961) 203–204.
- [83] G.J. Ogilvie, *Bombardment of Metals by Inert Gas Ions*, Australian Journal of Physics, **13** (1960) 402.
- [84] C. Teichert, C. Ammer, M. Klaua, *Step formation on the ion-bombarded Ag(100) surface studied by LEED and Monte Carlo simulations*, physica status solidi (a), **146** (1994) 223–242.
- [85] S. Saito, K. Takeda, T. Soumura, T. Tani, T. Maeda, *Effects of surface roughness and patches on the work function of cobalt*, physica status solidi (a), **142** (1994) K29–K32.
- [86] W. Li, D.Y. Li, *On the correlation between surface roughness and work function in copper*, The Journal of Chemical Physics, **122** (2005) 064708–064706.
- [87] B.N. Makarenko, A.B. Popov, A.A. Shaporenko, A.P. Shergin, *Velocity dependence of ionization probability of Be, Cu, Ag, W, Pb and Sn atoms sputtered by 5.5 keV Ar⁺ ions*, Radiation Effects and Defects in Solids, **113** (1990) 263–268.

- [88] T. Peters, C. Haake, D. Diesing, D.A. Kovacs, A. Golczewski, G. Kowarik, F. Aumayr, A. Wucher, M. Schleberger, *Hot electrons induced by slow multiply charged ions*, New Journal of Physics, **10** (2008).
- [89] M.P. Ray, R.E. Lake, C.E. Sosolik, *Alkali ion scattering from Ag(001) and Ag thin films at low and hyperthermal energies*, Nuclear Instruments and Methods in Physics Research Section B, **267** (2009) 615–619.
- [90] M.P. Ray, R.E. Lake, C.E. Sosolik, *Energy transfer in quasibinary and collective scattering events at a Ag(001) surface*, Physical Review B, **79** (2009) 155446.
- [91] H.B. Michaelson, *The work function of the elements and its periodicity*, Journal of Applied Physics, **48** (1977) 4729.
- [92] D. Hasselkamp, K.G. Lang, A. Scharmann, N. Stiller, *Ion induced electron emission from metal surfaces*, Nuclear Instruments and Methods, **180** (1981) 349–356.
- [93] H. Eder, F. Aumayr, H. Winter, *Search for projectile charge dependence of kinetic electron emission from clean polycrystalline gold*, Nuclear Instruments and Methods in Physics Research Section B, **154** (1999) 185–193.
- [94] D.E. Eastman, *Photoemission Spectra for Liquid and Crystalline Au*, Physical Review Letters, **26** (1971) 1108–1110.
- [95] M. Chelvayohan, C.H.B. Mee, *Work function measurements on (110), (100) and (111) surfaces of silver*, Journal of Physics C: Solid State Physics, **15** (1982) 2305.
- [96] A.W. Dweydari, C.H.B. Mee, *Work function measurements on (100) and (110) surfaces of silver*, physica status solidi (a), **27** (1975) 223–230.
- [97] M. Uda, A. Nakamura, T. Yamamoto, Y. Fujimoto, *Work function of polycrystalline Ag, Au and Al*, Journal of Electron Spectroscopy and Related Phenomena, **88-91** (1998) 643–648.
- [98] A.W. Dweydari, C.H.B. Mee, *Oxygen adsorption on the (111) face of silver*, physica status solidi (a), **17** (1973) 247–250.
- [99] H.A. Engelhardt, D. Menzel, *Adsorption of oxygen on silver single crystal surfaces*, Surface Science, **57** (1976) 591–618.
- [100] G.D. Magnuson, C.E. Carlston, *Electron Ejection from Metals due to 1- to 10-keV Noble Gas Ion Bombardment. II. Single Crystal*, Physical Review, **129** (1963) 2409–2412.

- [101] P.W. Bridgman, *The Universal Constant of Thermionic Emission*, Physical Review, **27** (1926) 173–180.
- [102] E. Wigner, *On the Constant A in Richardson's Equation*, Physical Review, **49** (1936) 696–700.
- [103] D. Kost, S. Facsko, W. Möller, R. Hellhammer, N. Stolterfoht, *Channels of Potential Energy Dissipation during Multiply Charged Argon-Ion Bombardment of Copper*, Physical Review Letters, **98** (2007) 225503.
- [104] B. Weidtmann, A. Duvenbeck, S. Hanke, A. Wucher, *Crystallographic effects in the kinetic excitation of metal surfaces: A computational study: Proceedings of the 17th International Workshop on Inelastic Ion-Surface Collisions*, Nuclear Instruments and Methods in Physics Research Section B, **267** (2009) 598–600.
- [105] B. Weidtmann, *Dimensionen der Zellen, in welchen sich in den Modellrechnungen stark erhöhte Elektronentemperaturen befinden (3x3 Angstrom)*, Personal Communication, (30.03.2012).
- [106] L.M. Kishinevsky, *Estimation of electron potential emission yield dependence on metal and ion parameters*, Radiation Effects, **19** (1973) 23–27.
- [107] H. Kudo, *Ion induced electron emission from crystalline solids*, Springer-Verlag (2002).
- [108] F. Peeters, E.R. Puckrin, A.J. Slavin, *Angular dependence of the secondary electron emission crystal current: Effects of surface modification*, Journal of Vacuum Science & Technology A, **8** (1990) 797–799.
- [109] U. von Gemmingen, *Ion induced secondary electron emission from single crystal surfaces*, Surface Science, **120** (1982) 334–345.
- [110] B.A. Brusilovsky, *Directional effects in kinetic ion-electron emission*, Vacuum, **35** (1985) 595–615.
- [111] M. Marpe, *Untersuchungen zur kinetischen Anregung von Festkörpern unter Clusterionenbeschuss*, Diplomarbeit, Fakultät für Physik, Universität Duisburg-Essen (2009).
- [112] S. Meyer, D. Diesing, A. Wucher, *Kinetic Electron Excitation in Atomic Collision Cascades*, Physical Review Letters, **93** (2004) 137601.

- [113] D. Fregenal, G. Bernardi, P. Focke, W. Meckbach, *Convoy-electron emission induced by multiple collisions of H^+ and H^0 on a thick He target*, Physical Review A, **56** (1997) 415–420.
- [114] J. Gibbons, S. Elston, K. Kimura, R. DeSerio, I. Sellin, J. Burgdörfer, J. Grandin, A. Cassimi, X. Husson, L. Liljeby, M. Druetta, *Observation of rapid evolution of convoy electron angular distributions*, Physical Review Letters, **67** (1991) 481–484.
- [115] M. Marpe, C. Heuser, D. Diesing, A. Wucher, *Internal electron emission in metal-insulator-metal thin film tunnel devices bombarded with keV argon and gold-cluster projectiles*, Nuclear Instruments and Methods in Physics Research Section B, **269** (2011) 972–976.
- [116] H.D. Hagstrum, *Theory of Auger Ejection of Electrons from Metals by Ions*, Physical Review, **96** (1954) 336–365.
- [117] R.A. Baragiola, C.A. Dukes, P. Riccardi, *Plasmon excitation in ion solid interactions*, Nuclear Instruments and Methods in Physics Research Section B, **182** (2001) 73–83.
- [118] S.M. Ritzau, R.A. Baragiola, R.C. Monreal, *Proton-induced kinetic plasmon excitation in Al and Mg*, Physical Review B, **59** (1999) 15506–15512.
- [119] E.A. Sánchez, J.E. Gayone, M.L. Martiarena, O. Grizzi, R.A. Baragiola, *Excitation of volume plasmons in glancing collisions of protons with Al(111) surfaces*, Physical Review B, **61** (2000) 14209–14214.
- [120] P. Riccardi, P. Barone, M. Camarca, A. Oliva, R.A. Baragiola, *Plasmon excitation in Al by keV Ne and Ar ions*, Nuclear Instruments and Methods in Physics Research Section B, **164–165** (2000) 886–890.
- [121] P. Riccardi, P. Barone, M. Camarca, N. Mandarino, F. Xu, A. Oliva, R.A. Baragiola, *Bulk plasmon excitation in the interaction of Ne^+ and Ar^+ ions with polycrystalline Al surfaces*, Nuclear Instruments and Methods in Physics Research Section B, **182** (2001) 84–88.
- [122] S. Hanke, *Modellierung kinetischer Anregungsprozesse bei der Teilchen-Oberflächen-Wechselwirkung*, Diplomarbeit, Fakultät für Physik, Universität Duisburg-Essen (2010).
- [123] S. Hanke, *Rückgang der inneren Elektronenausbeute um mehrere Größenordnungen für thermionische Behandlung mittels der Richardson-Dushman Gleichung im System 5-keV Ag \rightarrow Ag*, Personal Communication (2010).

- [124] A. Duvenbeck, A. Wucher, *Low-energy electronic excitation in atomic collision cascades: A nonlinear transport model*, Physical Review B, **72** (2005) 165408.
- [125] S. Hanke, A. Duvenbeck, B. Weidtmann, A. Wucher, *Influence of the polar angle of incidence on electronic substrate excitations in keV self-bombardment of solid silver: Computer Simulations of Radiation Effects in Solids*, Nuclear Instruments and Methods in Physics Research Section B, **269** (2011) 1665–1667.
- [126] C. Heuser, M. Marpe, D. Diesing, A. Wucher, *The possible role of anisotropy in kinetic electronic excitation of solids by particle bombardment*, Nuclear Instruments and Methods in Physics Research Section B, **269** (2011) 1190–1194.
- [127] J.I. Juaristi, R. Díez Muiño, A. Dubus, M. Rösler, *Charge-state dependence of kinetic electron emission induced by slow ions in metals*, Physical Review A, **68** (2003) 012902.
- [128] J.I. Juaristi, M. Rösler, *Atomic number dependence of the forward/backward kinetic electron emission induced by slow ions in carbon foils*, Nuclear Instruments and Methods in Physics Research Section B, **157** (1999) 254–258.
- [129] E. Zaremba, J.H. Rose, L.M. Sander, H.B. Shore, *Self-consistent screening of a proton in jellium*, Journal of Physics F: Metal Physics, **7** (1977) 1763.
- [130] A. Messiah, *Quantenmechanik*, 1. Auflage, De Gruyter (1976), p. 344.
- [131] J.I. Juaristi, *Anregungsverteilung von (freien) Elektronen durch Stöße mit Ar-Projektilen*, Personal Communication, (20.10.2010).
- [132] J.I. Juaristi, *Diskussion der Streuresonanzen in den Anregungsverteilungen*, Personal Communication, (10.04.2012).
- [133] J.P. Biersack, *Calculation of projected ranges -- analytical solutions and a simple general algorithm*, Nuclear Instruments and Methods, **182-183** (1981) 199–206.
- [134] K. Yasui, *Origin of fast electrons from slow atomic collisions*, Physical Review A, **48** (1993) 1711–1713.
- [135] R.A. Baragiola, E.V. Alonso, A. Oliva, A. Bonanno, F. Xu, *Reply to Origin of fast electrons from slow atomic collisions*, Physical Review A, **48** (1993) 1714–1716.
- [136] A. Russek, J. Meli, *Ionization phenomena in high-energy atomic collisions*, Physica, **46** (1970) 222–243.
- [137] M.M. Jakas, *Trapping of a classical electron between two heavy scattering centers*, Physical Review A, **52** (1995) 866.

- [138] E. Fermi, *On the Origin of the Cosmic Radiation*, Physical Review, **75** (1949) 1169.
- [139] G. Falcone, Z. roubek, *Kinetic electron emission from solids induced by slow particles*, Nuclear Instruments and Methods in Physics Research Section B, **58** (1991) 313–316.
- [140] K. Ohya, *Monte Carlo simulation of heavy ion induced kinetic electron emission from an Al surface*, Nuclear Instruments and Methods in Physics Research Section B, **195** (2002) 281–290.
- [141] T. Ishitani, T. Yamanaka, K. Inai, K. Ohya, *Secondary electron emission in scanning Ga ion, He ion and electron microscopes: Selected papers from the 19th conference on Ion-Surface Interactions*, Vacuum, **84** (2010) 1018–1024.
- [142] S. Ullah, A.H. Dogar, A. Qayyum, *Monte Carlo study of ion-induced backward and forward secondary electron emission from thin Al foil*, Nuclear Instruments and Methods in Physics Research Section B, **266** (2008) 577–582.
- [143] H. Rothard, *Interaction of swift heavy particles with solids: electron emission*, Nuclear Instruments and Methods in Physics Research Section B, **87** (1994) 149–155.
- [144] J.C. Ashley, *Energy loss rate and inelastic mean free path of low-energy electrons and positrons in condensed matter*, Journal of Electron Spectroscopy and Related Phenomena, **50** (1990) 323–334.
- [145] H. Rothard, K. Kroneberger, E. Veje, A. Clouvas, J. Kemmler, P. Koschar, N. Keller, S. Lencinas, P. Lorenzen, O. Heil, D. Hofmann, K.-O. Groeneveld, *Experimental study of molecular and cluster effects in secondary electron emission*, Physical Review B, **41** (1990) 3959–3967.
- [146] K. Stella, D. Diesing, *The field dependence of aging processes*, Journal of the Electrochemical Society, **154** (2007) C663–C670.
- [147] J.P. Biersack, L.G. Haggmark, *A Monte Carlo computer program for the transport of energetic ions in amorphous targets*, Nuclear Instruments and Methods, **174** (1980) 257–269.

Danksagung

Der Weg, den ich vor Jahren begonnen habe, hat nun mit der Fertigstellung dieser Arbeit sein Ziel erreicht und ich möchte diesen Moment nutzen, um mich bei einigen Leuten zu bedanken, die mich in unterschiedlichster Funktion auf diesem Weg begleitet haben:

Ein ganz großer Dank gilt meinen Eltern und Geschwistern, welche immer für mich da waren und mir in guten wie in schlechten Zeiten den Rücken frei gehalten haben. Ihr habt wesentlich dazu beigetragen, dass ich nun da stehe, wo ich jetzt bin!

Ein großes Dankeschön möchte ich meinem Doktorvater Prof. Dr. Andreas Wucher aussprechen, der mir die Möglichkeit gegeben hat in seiner Arbeitsgruppe zu promovieren. Da er mir bei der Bearbeitung meines Themas weitestgehend freie Hand gelassen hat, konnte ich selbstständig neue Wege zur Bearbeitung der Aufgabenstellung ausprobieren und so viel an Erfahrung sammeln. Trotzdem war er stets parat, wenn ich mich mal in einer Sackgasse gesteckt habe, und hat mir immer neue Wege und Perspektiven eröffnet. Für diese Unterstützung und sein Vertrauen in mich sei ihm herzlich gedankt.

Ebenso möchte ich Prof. Dr. Friedrich Aumayr dafür danken, dass er sich als Gutachter meiner Arbeit zur Verfügung gestellt hat. Durch seine Arbeiten auf dem Gebiet der externen Emission und durch seine Kooperationen mit unserem Fachbereich habe ich wichtige Informationen sammeln, die wesentlich zum Gelingen dieser Arbeit beigetragen haben.

Ein großer Dank gebührt auch Dr. Detlef Diesing aus der physikalischen Chemie der Arbeitsgruppe Hasselbrink. Durch seine Erfahrung in der Herstellung, Handhabung von und in den Messungen an MIM-Systemen habe ich sehr viel von ihm lernen können. Ebenso war er stets diskussionsbereit und hatte immer ein offenes Ohr für mich, wenn ich Experiment oder in der MIM-Modellierung nicht weiter wusste oder wieder alles infrage gestellt habe. Dazu hat er wesentlichen Anteil daran, dass ich die numerischen Modellierungen der MIM-Systeme erst in Maple und hinterher in C durchführen konnte, und war auch auf Programmierenebene stets ein kompetenter, witziger und hilfsbereiter Kollege.

Ein weiterer Dank gebührt Dr. Domocos Kovacs, der mich auch in meiner Promotion einige Zeit begleitet hat. Auch durch ihn habe ich in schier endlosen Diskussionen viel über die MIM-Systeme und die Interpretation der Messergebnisse gelernt.

Ich möchte auch Mario Marpe danken, durch den ich in unserer gemeinsamen Messzeit während seiner Diplomarbeit neue Ideen und Techniken bei der Durchführung der MIM-Experimente gewonnen habe. Auch abseits des Fachlichen konnte ich mich stets an ihn wenden, wenn ich mal nicht weiter wusste und eine zweite Meinung zu was auch immer brauchte.

Ein weiterer Dank geht an Inaki Juaristi, welcher bei unserem Treffen auf der IISC-18 sehr hilfsbereit und aufgeschlossen war und mich in die Welt der Quantenstreuung eingeführt hat. Dazu hat er sich bereit erklärt, für mich die Winkelverteilungen angeregter Elektronen zu berechnen, welche das Fundament meines anisotropen Transportmodells bilden. Muchas gracias!

Ein herzlicher Dank geht auch an die Arbeitsgruppe Möller in Person von Alexander Bernhart und Mark Kaspers, welche mir die BEEM-Daten zur Verfügung gestellt haben, und bei dem Versuch, diese zu verstehen und zu interpretieren, stets ein offenes Ohr für mich hatten. Auch bei anderen Fragen zu LEED und Oberflächenbeschaffenheiten waren sie sehr hilfsbereit.

Dem Rest der Arbeitsgruppe (Andreas, Anja, Boris, Lars, Martin, Steffi, Werner) möchte ich auch für die angenehme Arbeitsatmosphäre und die Bereitschaft, zu jeder Zeit meine - teils recht abstrusen - Fragen zu beantworten, danken.

Zum Schluss sei der DFG und dem SFB616 gedankt, welche durch ihre finanzielle Förderung und die Bereitstellung von Geldern meine Promotion überhaupt erst ermöglicht und mir darüber hinaus den einen oder anderen internationalen Konferenzaufenthalt ermöglicht haben.

Erklärung

Hiermit erkläre ich, dass ich die vorliegende Arbeit selbstständig angefertigt habe.

Es wurden nur die in der Arbeit ausdrücklich benannten Quellen und Hilfsmittel benutzt. Wörtlich oder sinngemäß übernommenes Gedankengut habe ich als solches kenntlich gemacht.

Diese Dissertation wurde ausschließlich in diesem Promotionsverfahren eingereicht. Es liegt bislang kein Fehlversuch vor.

Mit dieser Arbeit wird die Erreichung des Doktorgrads (Dr. rer. nat.) gemäß § 1 Satz 2 angestrebt

24.06.2012, Duisburg

Datum, Ort

Christian Heuser

Unterschrift